LE JOURNAL DE PHYSIQUE

ET

LE RADIUM

COLLOQUE INTERNATIONAL SUR LE RÔLE DU CORTÈGE ÉLECTRONIQUE DANS LES PHÉNOMÈNES RADIOACTIFS

PRÉAMBULE

Le rôle du cortège électronique dans les phénomènes radioactifs a été longtemps sous-estimé. Ce sont les phénomènes de capture électronique et de conversion interne qui ont révélé l'importance de ce rôle.

Dans ces deux cas, en effet, la présence du cortège ouvre, pour le noyau, une possibilité nouvelle de désintégration ou de désexcitation. On doit donc s'attendre à ce que certaines perturbations apportées au cortège se répercutent sur ces désintégrations ou désexcitations, et c'est pourquoi il a été possible de modifier la période d'une capture électronique ou la vie d'un isomère nucléaire, en modifiant la structure chimique des molécules renfermant les noyaux radioactifs.

Plus récemment encore on s'est aperçu que ces mêmes modifications chimiques peuvent altérer les corrélations qui prennent naissance entre plusieurs rayonnements issus d'un même noyau.

Réciproquement, les transformations nucléaires s'accompagnent d'importantes réorganisations du cortège électronique : excitations et ionisations constituent les témoignages les plus spectaculaires de ces réorganisations.

On conçoit sans peine l'intérêt que présentent de telles études qui apportent des renseignements d'une extrême délicatesse concernant tout autant la structure du noyau que celle du cortège.

C'est pourquoi il a paru intéressant d'organiser un Colloque International entièrement réservé à l'analyse de ce sujet et des questions connexes, comme l'évaluation du facteur de fluorescence et l'orientation des noyaux.

Le Centre National de la Recherche Scientifique en a donc pris l'initiative sur la proposition de M[me] Irène JOLIOT-CURIE et de MM. Louis de BROGLIE et Frédéric JOLIOT qui, assistés de M. et M[me] DAUDEL, en ont assuré la direction : ce Colloque s'est tenu à l'Institut du Radium de Paris, du 28 juin au 3 juillet 1954, à l'occasion du 10[e] anniversaire de la fondation de l'Institut de Mécanique Ondulatoire Appliquée à la Chimie et à la Radioactivité (Centre de Chimie Théorique de France.)

Assistaient à cette réunion les physiciens suivants :

WINTHER (Danemark).

BLIN-STOYLE, BURHOP, CURRAN, GRACE, HALBAN, SPIERS (Grande-Bretagne).

De Groot, Rietjins, Tolhoek, van den Bold, Vester (Hollande).

Thosar (Indes).

Moshinsky (Mexique).

Dionisio (Portugal).

Heer (Suisse).

Debrotin, Skobeltzyn, Sliv (U. R. S. S.).

Deutsch, Glauber, Haynes, Martin, Rose (U. S. A.).

et Mladjenovič (Yougoslavie).

Goldhaber et Levinger (U. S. A.) n'ayant pu venir à Paris avaient cependant tenu à nous faire parvenir leur Communication.

La France était représentée par d'importantes délégations en provenance des Laboratoires suivants :

Commissariat à l'Énergie Atomique (dont Abragam).

Faculté des Sciences de Strasbourg (dont Gorodetzky et Perey).

Institut du Radium (dont Avignon, Benoist, Bouchez, Frilley, Lecoin, Michalovicz, Riou, Teillac et Valadares).

Institut de Mécanique Ondulatoire Appliquée (dont Daudel et Jacques).

Laboratoire de l'Électroaimant du C. N. R. S. (dont Rosenblum).

Laboratoire de Physique et Chimie Nucléaire du Collège de France (dont Charpak, H. et M. Langevin, N. Marty, Nataf, Radvanyi et Renard).

et Laboratoire de Synthèse Atomique.

M. Dupouy, Directeur du Centre National de la Recherche Scientifique, a bien voulu assurer la présidence de la séance d'ouverture.

On trouvera ci-après le texte de chacune des trente-trois Communications qui ont été faites à ce Colloque, ainsi qu'un résumé des discussions très animées auxquelles elles donnèrent naissance.

Le Français, l'Anglais et le Russe furent les trois principales langues utilisées au cours de ces discussions et nous tenons à remercier bien vivement Mlle Kadontzef et Mme Laberrigue qui ont bien voulu jouer le difficile rôle d'interprète.

Il ne nous appartient pas de dégager les conclusions de ce Colloque. Chaque lecteur pourra sur ce sujet se faire une opinion personnelle, fonction de la position de son centre d'intérêt.

Qu'il nous soit cependant permis de noter quelques idées qui, au cours des discussions, nous ont paru se faire jour avec une particulière netteté :

1° La théorie de la capture électronique néglige un phénomène physique important : la corrélation qui existe entre les positions des électrons. Cette négligence est peut-être l'origine des écarts qui séparent les valeurs expérimentales des valeurs théoriques caractérisant le rapport de la probabilité de capture L à la probabilité de capture K.

2° L'excitation par la lumière d'atomes renfermant des noyaux radioactifs est peut-être un nouveau moyen efficace de modifier leur période de désintégration.

3° Le problème des doubles désintégrations électroniques reste très important. La découverte d'une émission de positons monoénergétiques apporterait notamment des renseignements fondamentaux sur les propriétés du neutrino.

ALLOCUTIONS A LA SÉANCE D'OUVERTURE DU COLLOQUE SUR LE RÔLE DU CORTÈGE ÉLECTRONIQUE DANS LES PHÉNOMÈNES RADIOACTIFS

Allocution de Mme Irène JOLIOT-CURIE,

Prix Nobel, Professeur à la Sorbonne.

Comme Directeur du Laboratoire Curie, je désire saluer les travailleurs scientifiques qui s'y réunissent aujourd'hui, et plus particulièrement les travailleurs étrangers.

M. Frédéric Joliot qui, avec M. Louis de Broglie et moi-même, patronne ce Colloque, regrette de ne pouvoir se trouver ici, étant malade actuellement. Un grand nombre de travailleurs de son laboratoire se trouvent parmi nous.

Quand M. Daudel m'a parlé de l'organisation de cette réunion, j'avoue que je craignais que le sujet ne soit un peu restreint. Mais nous voyons au contraire qu'il y a largement matière à un travail d'une semaine en laissant le temps nécessaire à de profitables discussions.

Ceci montre l'intérêt qu'il y a pour un laboratoire de radioactivité à être en liaison étroite avec des spécialistes de la Chimie théorique aussi bien qu'avec ceux de la Physique théorique. J'apprécie vivement la collaboration étroite qui s'est établie entre les expérimentateurs de mon laboratoire et le groupe de Chimie théorique qui s'est formé autour de M. Daudel. J'apprécie aussi l'utile liaison qui existe avec le groupe de travail de M. Louis de Broglie, par le moyen des séminaires et des conférences.

De la part de M. Frédéric Joliot et de moi-même, je souhaite que ce Colloque accomplisse un fructueux travail et stimule les relations futures entre nos travailleurs et ceux des laboratoires étrangers.

Allocution de M. Louis de BROGLIE,

Prix Nobel, Secrétaire Perpétuel de l'Académie des Sciences.

1. Le Comité Directeur du Centre de Chimie théorique de France (devenu récemment Institut de Mécanique ondulatoire appliquée à la Chimie et à la Radioactivité) a proposé l'organisation d'un Colloque international à l'occasion du deuxième anniversaire de la fondation de cet organisme.

Le C. N. R. S. a bien voulu apporter son précieux concours à la réalisation de ce projet et c'est grâce à lui que nous sommes aujourd'hui réunis. Je tiens donc à dire à M. Dupouy combien nous lui sommes reconnaissants d'avoir sans cesse pris le plus grand intérêt au fonctionnement du Centre de Chimie théorique.

Il peut paraître *a priori* un peu surprenant que nous ayons choisi pour sujet de ce Colloque une question de Radioactivité.

Les raisons qui justifient ce choix sont multiples.

L'organisation par le C. N. R. S. d'un Colloque sur la liaison chimique en 1948 et la réunion organisée en 1953 par la Société de Chimie physique sur la structure moléculaire ont permis des contacts fructueux entre les chercheurs qui s'intéressent à ces questions et il ne nous a pas paru indiqué de provoquer à nouveau dès maintenant un Colloque de cette nature.

Par ailleurs, le Centre de Chimie théorique ne s'est jamais uniquement occupé de problèmes touchant à la structure des molécules : il a toujours aussi discuté des problèmes de Radioactivité et la présence au sein de son Comité Directeur de Mme et de M. Joliot suffit à le montrer.

C'est le principal animateur du Centre de Chimie théorique, M. Raymond Daudel, qui, utilisant le mode de pensée auquel conduit l'emploi de la Mécanique ondulatoire, a pour la première fois prévu (simultanément et indépendamment de Segré) la possibilité de faire varier sous l'influence d'effets chimiques la période de désintégration de certains

noyaux, soulignant le rôle du cortège électronique dans les phénomènes radioactifs, sujet du Colloque qui s'ouvre aujourd'hui.

Un exposé sommaire des principaux travaux effectués depuis 10 ans au Centre de Chimie théorique montrera l'importance des problèmes de Radioactivité dans la vie de cet organisme.

Depuis son passage à l'Ecole de Physique et de Chimie et notamment grâce au cours donné par M. Lepape, M. Daudel portait un grand intérêt à la Chimie théorique, et les problèmes de Radiochimie que lui posa Mme Joliot-Curie lui offrirent un immense champ d'application de ses recherches.

Dès 1942 M. Joliot confia à MM. Potier et Daudel le soin de donner au Collège de France une série de conférences de Chimie théorique.

Sur les conseils de M. Joliot, M. Lacassagne posa à M. Daudel le problème difficile d'éclaircir le mécanisme de la cancérisation par les substances chimiques.

M. Dufraisse, qui fut l'un des premiers à donner un cours sur l'idée de mésomérie, et M. Pascal prirent une part active au mouvement qui se créait autour de la Chimie théorique et c'est ainsi que naquit le Centre de Chimie théorique qui en moins de 10 ans est à l'origine de plus de 200 publications, a contribué à la formation de plus de 20 chercheurs dont Mme Benoist, M. Jean, Mme et M. Pullman et M. Sándorfy pour ne citer que les plus anciens.

2. **La relation « structure-réactivité » des molécules et l'indice de valence libre.** — Les premiers travaux du Centre de Chimie théorique portaient sur l'établissement d'une relation entre la réactivité chimique et la structure des hydrocarbures conjugués.

Partant d'une idée de Svartholm [1], R. Daudel et Mme A. Pullman [2], ont défini, selon la méthode de la mésomérie, pour chaque atome de carbone d'une molécule de ce type un *indice de valence libre.*

Cette grandeur vient compléter la notion d'indice de liaison introduite précédemment par Pauling [3] et montre que, comme la force d'une liaison, la *valence libre est susceptible de variation continue.*

La Mécanique ondulatoire permet le calcul de ces indices et l'ensemble des grandeurs caractérisant ainsi les atomes et les liaisons d'une molécule forme son *diagramme moléculaire.*

L'école anglaise dirigée par Coulson [4] a introduit un peu plus tard un « free valence number » à partir d'une technique un peu différente de la mésomérie (*celle des orbites moléculaires*). Dans une série d'articles communs en anglais et en français, Coulson et Daudel [5] ont montré la convergence des résultats obtenus par les deux méthodes.

Actuellement de nombreux diagrammes moléculaires ont été calculés et donnent un point de départ fort utile dans l'étude théorique de la réactivité des molécules.

En 1946 M. Daudel et Mme Pullman [6] avaient proposé des règles semi-empiriques pour relier les propriétés chimiques des molécules à leurs diagrammes moléculaires.

Plus tard, en 1950, Daudel, Sándorfy, Vroelant, Yvan et Chalvet [7] ont montré qu'il existe *une relation entre l'indice de valence libre d'un atome d'un hydrocarbure conjugué alternant et la hauteur de la barrière de potentiel intervenant dans une réaction de substitution sur cet atome.*

Puisque cette barrière de potentiel est, selon la théorie de l'état de transition, la principale grandeur gouvernant la vitesse d'une réaction chimique, le problème de l'établissement d'une relation entre « *structure* et *réactivité* » se trouvait être en partie résolu d'une façon purement théorique.

Les résultats de cette étude ne se firent pas longtemps attendre. L'école de Coulson [8] reprit cette théorie et la confirma totalement. Les expérimentateurs montrèrent de leur côté l'intérêt pratique de cette relation.

Aux Pays-Bas, dans les laboratoires de la Société Shell, MM. Kooyman et Farenhorst [9] montrèrent effectivement qu'il existe bien dans le cas de l'action du radical trichlorométhyle sur les hydrocarbures aromatiques une relation croissante entre vitesse de réaction et indice de valence libre.

Une autre confirmation expérimentale de ce fait vient d'être donnée dans une brillante thèse effectuée à Bruxelles dans le laboratoire du Professeur Martin.

3. **Une application à l'étude des corps cancérogènes.** — Une des premières applications étonnantes que les chercheurs du Centre de Chimie théorique, répondant ainsi au vœu de M. Lacassagne, firent de leurs études sur la réactivité chimique fut l'étude du mécanisme de l'action sur les tissus vivants des corps cancérogènes.

Reprenant les idées d'Otto Schmidt, MM. Lacassagne, Buu Hoï, Daudel et Rudali [10], avaient en effet montré que l'on peut très bien expliquer l'antagonisme que l'on observe entre un hydrocarbure peu cancérogène et un hydrocarbure très cancérogène en admettant que ceux-ci se fixent sur les cellules à l'aide d'une de leurs liaisons riche en électrons.

(1) *Arc. och Kim. Min. Géol.*, 1941, A **15**, n° 13.
(2) *C. R. Acad. Sc.*, 1945, **220**, 888.
(3) *Voir* par exemple : *The Nature of the chemical bond.*
(4) *Trans. Faraday Soc.*, 1946, **42**, 265.
(5) *Voir* par exemple : Coulson P. et R. Daudel, *Revue Scientifique*, 1947, **75**, 29; *Bull. Soc. Chim.*, 1948, **15**, 1187.
(6) *J. Physique Rad.*, 1946, **8**, 105.
(7) *Bull. Soc. Chim.*, 1950, **18**, 66.
(8) Burkitt, Coulson et Longuet-Higgins, *Trans. Faraday Soc.*, 1951, **48**, 553.
(9) *Nature*, 1952, **169**, 153.
(10) *C. R. Soc. Biol.*, 1944, **137**, 282.

Grâce à la méthode des diagrammes moléculaires, Mme Pullman [11] observa l'existence d'une relation assez bien vérifiée entre la charge électronique d'une région particulière, dite région K, d'un hydrocarbure et son pouvoir cancérogène.

Cette étude développée par M. et Mme Daudel, B. Pullman, Mme Roux en France, Greenwood en Angleterre, Pratto et Nebbia en Italie, a permis la prévision du pouvoir cancérogène d'une série de dérivés des benzacridines qui n'avaient pas encore été préparés à l'époque des calculs [12].

Ces prévisions de 1947 ont pu être confirmées d'une façon satisfaisante en 1952 par les travaux de MM. Buu Hoï et Zajdela [13].

4. **La réactivité des molécules dans leurs états excités.** — Dès 1946, M. Daudel et Mme Pullman avaient indiqué que les diagrammes moléculaires devraient pouvoir servir à l'étude de la réactivité des molécules dans leurs états excités, ouvrant ainsi une voie nouvelle vers des études théoriques de Photochimie.

Sandorfy [14] a largement développé ces questions. Grâce aux diagrammes moléculaires, il a pu, en particulier, expliquer la photoisomérisation du stilbène et de l'azobenzène en montrant que l'indice de liaison de la liaison centrale de ces molécules baisse sous l'influence de la lumière ce qui facilite la rotation autour de cette liaison des autres portions de la molécule.

Travaillant en Allemagne avec le Professeur Forster, Sándorfy a interprété les belles expériences de celui-ci, montrant que dans leurs états excités certaines molécules basiques prennent un caractère acide.

Sándorfy a encore apporté une contribution à l'étude délicate du mécanisme de la photo-oxydation découverte par M. C. Dufraissé.

Actuellement M. Masse poursuit des recherches analogues en discutant du point de vue théorique les intéressantes recherches expérimentales que M. Rumpf et ses collaborateurs effectuent au laboratoire de Bellevue.

5. **Le calcul des distances interatomiques.** — Prenant pour point de départ une idée de Hartmann [15], MM. Vroelant et Daudel [16] ont mis au point une élégante méthode de calcul des distances interatomiques dans les molécules aromatiques.

Cette méthode souligne l'importance de l'arrangement géométrique des noyaux au voisinage d'une liaison chimique dans la détermination de la longueur de celle-ci.

Appliquée en 1949 au cas du naphtalène, cette méthode a permis le calcul précis des distances interatomiques que Robertson et ses collaborateurs à Glasgow ont ensuite mesurées avec le plus grand soin grâce à la diffraction des rayons X.

Au cours d'une conférence dont on trouvera le texte dans le *Journal de Chimie Physique* (1950, 47, 47), Robertson a comparé ses résultats avec les calculs des chercheurs français et a montré que l'écart entre théorie et expérience tombe dans le domaine de l'erreur expérimentale.

6. **Le rôle du cortège électronique dans les phénomènes radioactifs.** — Les connaissances théoriques que M. Daudel a ainsi acquises sur la structure des molécules et son rôle d'expérimentateur a l'Institut du Radium l'ont naturellement amené à réfléchir sur les relations pouvant exister entre la structure d'une molécule et les propriétés des noyaux qu'elle contient.

Il fut ainsi amené à prévoir en 1947 [17] que pour certains types de radioactivité (capture électronique et conversion interne), il devait être possible de modifier la période de désintégration d'un noyau à l'aide de méthodes chimiques. A la même époque et indépendamment, Segré [18] avait fait la même observation pour les captures électroniques.

Cette prévision était contraire à une opinion très répandue à l'époque. L'expérience faite en 1948 à l'Institut du Radium en collaboration avec M. Bouchez, Mme Daudel, MM. Muxart et Rogozinski [19] dans le cas de la capture électronique du béryllium devait cependant en démontrer l'exactitude.

On observa en effet une différence entre la période du fluorure de béryllium et celle du métal.

L'explication de ce phénomène rendait nécessaire de supposer l'existence de la capture d'électrons L que l'on avait pas encore observée directement à cette époque, mais que Pontecorvo devait découvrir quelque temps après.

Le groupe de Segré donna, en 1949, une confirmation des résultats expérimentaux du groupe français [20], puis en 1951, Bainbridge, Goldhaber et Wilson [21] montrèrent l'exactitude de la deuxième partie des prévisions de M. Daudel en observant une différence de période entre le pertechnéciate de potassium et le technécium qui se désintègre par conversion interne.

Dans ce domaine il faut citer les travaux de Mme Benoist [22] sur l'intervention globale des

(11) *Thèse Sciences*, 1946, Paris.

(12) Buu Hoi, Daudel et Daudel, Lacassagne, Lecoq, Martin et Rudali, *C. R. Acad. Sc.*, 1947, **225**, 238.

(13) *Acta de l'Union internationale contre le cancer*, 1950, **2**, 184.

(14) *Canadian J. Chem.*, 1953, **31**, 439.

(15) *Z. Naturfoschung*, A, février 1947.

(16) *Bull. Soc. Chim.*, 1949, **16**, 36.

(17) *Revue Scientifique*, 1947, **85**, 162.

(18) *Phys. Rev.*, 1947, **71**, 274.

(19) *C. R. Acad. Sc.*, 1948, **228**, 525.

(20) Leininger, Segré et Wiegand, *Phys. Rev.*, 1949, **76**, 897.

(21) *Phys. Rev.*, 1951, **84**, 1260.

(22) *Thèse Sciences*, Paris, 1951.

électrons du cortège périphérique des atomes dans le calcul même de la probabilité de capture électronique et l'étude détaillée faite par M. Jean ([23]) du phénomène de création *e*, le noyau émettant un électron qui vient se loger dans son cortège.

Ce phénomène n'a pas encore été découvert expérimentalement en raison des difficultés techniques qui gênent son étude, mais son existence paraît très probable.

7. La localisabilité des corpuscules. — Je ne voudrais pas terminer cet exposé sans signaler les nombreuses recherches de MM. Gouarné et Samuel ([24]) visant à perfectionner les méthodes de calcul de la Chimie théorique; celles de M. Laforgue ([24]) touchant d'une part au calcul d'erreur, d'autre part à la discussion de la signification profonde des grandeurs de la Chimie théorique.

Dans ce même ordre d'idée il faut citer les recherches de M. Vroelant ([25]) sur la configuration la plus probable et celles entreprises très récemment par M. Daudel, Mlle Brion, Mme Odiot sur la localisabilité des corpuscules.

Par ces préoccupations le Centre de Chimie théorique oriente une des parties de son activité dans le domaine de ce qu'on appelle aujourd'hui, « la recherche fondamentale ». Il s'agit de définir dans l'espace où évolue un groupe de corpuscule *des petits volumes ou « loges » où il est possible de rencontrer avec une forte probabilité un corpuscule et un seul de spin (et éventuellement de spin isotopique) donné.*

Il semble qu'il y ait là une voie permettant d'associer aux couches électroniques des atomes, et peut-être aux couches nucléoniques des noyaux, des couronnes sphériques, ce qui marque bien l'importance de la géométrie dans ces phénomènes.

Sur le terrain pratique, les considérations sur la localisabilité des corpuscules apporteront sûrement des précisions intéressantes sur la nature de la liaison chimique et permettront peut-être de lever certaines des objections que l'on formule contre les modèles « en couches » en justifiant l'introduction de la notion de couche sans attacher des nombres quantiques individuels aux corpuscules.

Et cette remarque nous ramène à nouveau vers les préoccupations de ce Colloque.

Il faut enfin souligner le fait que le Centre de Chimie théorique s'est toujours efforcé d'établir des confrontations nombreuses et constantes entre théories et expériences, conditions indispensables au développement des unes et des autres. Il a entretenu des relations ininterrompues avec les laboratoires étrangers et les autres laboratoires français.

En prenant l'initiative de ce Colloque, notre Centre est donc resté fidèle à sa tradition. Les savants étrangers et français. expérimentateurs et théoriciens, dont il a provoqué la réunion vont maintenant pouvoir confronter leurs pensées au cours de discussions qui, je n'en doute pas, seront à la fois nombreuses, passionnées et fructueuses.

Par une heureuse coïncidence, la présente réunion a lieu au moment du vingtième anniversaire de la découverte des radioéléments artificiels par M. et Mme Joliot-Curie, qui fut l'une des étapes décisives du développement de la Physique nucléaire. Elle a été organisée par les chercheurs de l'Institut du Radium où professa si longtemps Mme Pierre Curie. C'est d'ailleurs à l'Institut du Radium que furent effectués quelques uns des travaux les plus importants pour le sujet qui va vous occuper : je citerai les recherches de M. Lecoin et de Mlle Perey qui ont montré l'existence des désintégrations β ne s'accompagnant pas d'émissions β décelables et ont ainsi conduit à imaginer le phénomène de création *e*; je citerai aussi les recherches de M. Riou qui a été l'un des premiers à étudier l'ionisation des atomes sous l'influence de l'émission α. Placé sous de tels auspices, le Colloque qui va commencer s'annonce comme plein de promesses.

([23]) *C. R. Acad. Sc.*, 1948, **226**, 2064.
([24]) Nombreuses Notes dans les *Comptes rendus de l'Académie des Sciences* au cours de ces dernières années.
([25]) *C. R. Acad. Sc.*, 1953, **236**, 1666 et 1887.

NOTE SUR L'ÉTAT ACTUEL DE LA THÉORIE DU CORTÈGE ÉLECTRONIQUE

Par R. DAUDEL,

Institut du Radium et Institut de Mécanique ondulatoire appliquée
à la Chimie et à la Radioactivité.

Summary. — After a general survey of the main methods of calculating the atomic wave functions, a new method is described for the study of the correlations existing between the positions of electrons in atoms.

Introduction. — Les premières études réalisées dans le domaine de la Radio-activité ont conduit à considérer que le noyau des atomes se comportait comme un système insensible aux effets physiques ou chimiques extérieurs, comme un système présentant des propriétés spécifiques et tout à fait indépendantes du cortège électronique qui l'entoure.

On a dû peu à peu revenir sur cette affirmation et l'on s'est notamment aperçu que le cortège électronique peut en fait, jouer un rôle de tout premier plan dans les phénomènes radioactifs. En premier lieu il ouvre pour le noyau des voies de désintégration qui n'existeraient pas sans sa présence, ainsi qu'en témoignent le phénomène de conversion interne où un excédent d'énergie nucléaire est directement transféré à un électron du cortège et la capture électronique consistant en l'absorption, par le noyau, d'un électron périphérique. Le rôle du cortège est encore apparent dans le phénomène de création *e* [1] où un électron émis par le noyau se fixe dans le cortège. Dans d'autres cas, bien que moins évident, le rôle du cortège reste important. Au cours de la plupart des phénomènes radioactifs le cortège électronique se réarrange notamment en raison de la variation de charge nucléaire qui se produit et une partie de l'énergie du réarrangement peut provenir du noyau initial ou au contraire se retrouver sur le noyau final. Les excitations et les ionisations du cortège accompagnant les désintégrations α et β mettent en évidence un des aspects de ce phénomène.

C'est en réfléchissant aux fortes interactions qui existent ainsi entre les propriétés radioactives des noyaux et la structure des cortèges électroniques qui les entourent que nous [2] avons prévu la possibilité de faire varier les périodes de conversion interne et de capture *e* par simple modification de la nature chimique des molécules renfermant les noyaux radioactifs. Indépendamment et simultanément, Segré [3] arrivait aux mêmes conclusions en ce qui concerne la capture *e*. Nous avons pu étendre ensuite nos prévisions au cas des émissions β [4]. L'expérience a largement confirmé ces prévisions dans le cas de la capture *e* [5] et dans celui de la conversion interne [6], mais des difficultés techniques se sont jusqu'alors opposées aux vérifications de celles-ci dans le cas de l'émission β.

Très récemment on a également montré [7] que l'on peut perturber de façon très notable les corrélations angulaires existant entre plusieurs rayonnements émis en cascade par un noyau en modifiant la structure chimique de la matière émettrice.

Finalement on connaît maintenant un grand nombre d'exemples où les propriétés nucléaires interfèrent avec les propriétés électroniques et l'étude de ces interférences est autant profitable pour la Physique nucléaire que pour la Physique atomique ou moléculaire. C'est ainsi que l'étude des variations de période de capture *e* avec la nature chimique renseigne sur la densité électronique existant au sein des molécules tandis que la mesure des coefficients de conversion interne fournit des renseignements de premier ordre sur les caractéristiques des transitions nucléaires.

Mais pour être fécondes, ces études doivent s'appuyer sur des théories très élaborées et c'est pourquoi nous avons cru utile de rappeler au début de ce Colloque l'état actuel de la théorie du cortège électronique, notamment afin, espérons-nous, d'amorcer une discussion sur ce sujet. Nous voudrions surtout au cours de cet exposé insister sur le caractère essentiellement approximatif de certaines notions qui, à force de servir, finissent par sembler rigoureuses.

Notons encore, avant d'entrer dans le vif du sujet que la majorité des remarques que nous présenterons à propos du cortège s'applique au noyau, ces deux systèmes de corpuscules ne se présentant pas comme tellement différents dans le cadre d'une théorie générale.

Le cortège électronique des atomes dans la théorie non relativiste. — On peut développer la théorie du cortège électronique des atomes en négligeant l'effet de la relativité. Le spin est alors généralement introduit selon un procédé formel consistant le plus souvent dans l'emploi d'une coordonnée supplémentaire ω. Admettons encore que l'on confonde le centre de gravité du système

avec le noyau de l'atome, on peut alors représenter, dans tout état stationnaire de l'atome, les électrons par une fonction

$$\Psi\,(x_1, y_1, z_1, \omega_1, \ldots, x_i, y_i, z_i, \omega_i, \ldots, x_N, y_N, z_N, \omega_N)$$

si x_i, y_i, z_i, ω_i note le groupe des coordonnées associées au $i^{\text{ième}}$ électron.

Cette fonction est solution de l'équation classique

$$\left(-\sum \frac{h^2}{8\pi^2 m}\Delta_i + F_{\text{op}}\right)\Psi = E\Psi,$$

où quand on néglige les effets magnétiques l'opérateur potentiel d'interaction F_{op} se note

$$F_{\text{op}} = -\sum_i \frac{ze^2}{r_i} + \sum_{i<j} \frac{e^2}{r_{ij}},$$

avec

$$r_i = \sqrt{x_i^2 + y_i^2 + z_i^2},$$
$$r_{ij} = \sqrt{(x_j - x_i)^2 + (y_j - y_i)^2 + (z_j - z_i)^2}.$$

L'énergie totale s'écrit

$$E = -\int \Psi^* \sum_i \frac{h^2}{8\pi^2 m}\Delta_i \Psi \,d\tau + \int \Psi^* F_{\text{op}} \Psi \,d\tau,$$

le premier terme étant l'énergie cinétique T, le second, l'énergie potentielle F.

Arrêtons-nous un instant sur le second, par exemple. Introduisons la fonction de corrélation $P(1, 2)$ de Lennard Jones [8] qui est telle que

$$d\tau_1\,d\tau_2\,P(1, 2) = d\tau_1\,d\tau_2 \int \Psi^* \Psi \,d\tau_3 \ldots d\tau_n$$

note la probabilité de trouver l'électron 1 en $d\tau_1$, et l'électron 2 en $d\tau_2$.

Le terme en $\frac{e^2}{r_{12}}$ de F par exemple se note

$$\int P(1, 2)\frac{e^2}{r_{12}}\,d\tau_1\,d\tau_2.$$

L'élément différentiel de ce terme contient donc simplement la probabilité de trouver 1 en $d\tau_1$, 2 en $d\tau_2$ et le potentiel d'interaction $\frac{e^2}{r_{12}}$. Cette écriture directe souligne de suite le fait que l'ensemble de l'énergie du système peut s'écrire d'une façon purement « coulombienne » sans faire appel à la notion « d'énergie d'échange » dont le caractère *artificiel* est donc dès maintenant apparent.

Mais pour aider à la compréhension de la suite de notre exposé, nous croyons utile de rappeler qu'en général, la probabilité de trouver l'électron 1 en $d\tau_1$ et l'électron 2 en $d\tau_2$, n'est pas le produit de la probabilité $P(1)\,d\tau_1$ de trouver 1 en $d\tau_1$ et de la probabilité $P(2)\,d\tau_2$ de trouver 2 en $d\tau_2$ car ces deux derniers événements sont *corrélés* et non pas indépendants.

On voit aisément ce fait, en prenant une fonction d'onde suffisamment bonne, par exemple, l'une celle proposée par Hylleraas [9] pour représenter l'état fondamental de l'hélium, et qui s'écrit

$$\Psi(1, \omega_1, 2, \omega_2) = e^{-1{,}849\frac{r_1+r_2}{a_0}}\left(1 + 0{,}364\frac{r_{12}}{a_0}\right)\sigma(\omega_1, \omega_2),$$

σ étant une fonction antisymétrique devant la permutation des ω. Il apparaît clairement, en effet, que la probabilité de trouver 1 en $d\tau_1$ et 2 en $d\tau_2$ dépend de la distance r_{12}, alors que le produit de la probabilité de trouver 1 en $d\tau_1$ par la probabilité de trouver 2 en $d\tau_2$ n'en dépend pas. Les deux grandeurs considérées ne peuvent donc être égales.

Mais dans la pratique courante, on se contente souvent de fonctions moins élaborées et l'on fait quelquefois usage de fonctions négligeant totalement cette corrélation. Il en est ainsi quand on se contente d'adopter une fonction d'espace ayant la forme d'un produit de fonctions monoélectriques. Discutons le cas de deux électrons. On posera alors

$$\Psi(1, 2) = f(1)\,g(2),$$

auquel cas, on a clairement [1]

$$P(1) = f^*(1)\,f(1), \qquad P(2) = g^*(2)\,g(2),$$
$$P(1, 2) = f^*(1)\,g^*(2)\,f(1)\,g(2) = P(1)\,P(2).$$

Le principe de Pauli, sous sa forme rigoureuse, exige l'antisymétrie de la fonction d'onde totale c'est-à-dire ici soit la symétrie, soit l'antisymétrie de la fonction d'espace. Si l'état des deux électrons est singlet, la fonction d'espace doit être symétrique.

Si donc, on désire se mettre en accord avec le principe de Pauli, on ne pourra conserver le produit fg que si $g = f$, auquel cas, l'introduction de ce principe n'exigera pas de corrélation entre 1 et 2. Si f est différent de g, on sera conduit à poser

$$\Psi(1, 2) = \frac{1}{\sqrt{2}}[f(1)\,g(2) + f(2)\,g(1)],$$

d'où en admettant f et g réels pour simplifier l'écriture

$$P(1, 2) = \frac{1}{2}\{f^2(1)\,g^2(2) + f^2(2)\,g^2(1)\} + f(1)\,f(2)\,g(1)\,g(2),$$
$$P(1) = \frac{1}{2}[f^2(1) + g^2(1)] + f(1)\,g(1)\int f(2)\,g(2)\,d\tau_2,$$
$$P(2) = \frac{1}{2}[f^2(2) + g^2(2)] + f(2)\,g(2)\int f(1)\,g(1)\,d\tau_1.$$

On n'a plus cette fois

$$P(1, 2) = P(1)\,P(2),$$

c'est-à-dire que le principe de Pauli conduit à rétablir une partie de la corrélation que l'on avait négligée en adoptant une simple fonction-produit.

En remplaçant dans la formule donnant l'énergie potentielle le terme $P(1, 2)$ par son expression res-

[1] si f et g sont normées.

pective selon que l'on adopte comme fonction le produit fg ou le produit symétrisé, on reconnaît sans peine que la symétrisation entraîne l'apparition du terme supplémentaire dit « d'échange »

$$\int f(1)\,g(2)\,F_{\text{op}}\,g(1)\,f(2)\,d\tau_1\,d\tau_2.$$

On voit ainsi clairement que ce terme n'a pas une essence spéciale. Il provient simplement d'une meilleure expression de la probabilité $P(1, 2)\,d\tau_1\,d\tau_2$ de trouver l'électron 1 dans $d\tau_1$ et l'électron 2 dans $d\tau_2$. Si l'on veut lui donner un nom, il serait peut-être possible de l'appeler énergie potentielle de corrélation de Pauli puisque l'apparition de ce terme entraîne la prise en considération d'une partie des corrélations sous l'influence de la symétrisation de la fonction suggérée par le principe de Pauli.

Quelle que soit la nomenclature adoptée, il faut bien voir qu'il s'agit simplement d'un terme lié au fait que l'on représente mieux l'organisation réelle des électrons en donnant une meilleure approximation du terme $P(1, 2)$. On n'insistera en tout cas jamais assez sur le fait que le terme d'énergie d'échange *est très dangereux* [10] car il évoque l'idée d'une énergie liée à l'échange des positions des électrons; un tel échange ne peut absolument pas produire d'énergie. L'échange dont il est en fait question est purement symbolique, c'est celui des lettres f et g sous le signe intégral. Il est clair qu'au signe près, tout ce qui a été dit ici s'étend au cas des fonctions d'espace antisymétriques.

Si l'on étend notre convention de langage à l'énergie totale, nous sommes conduits à parler de l'énergie totale de corrélation de Pauli. Il faut encore insister sur le fait que quel que soit le nom qu'on lui donne, cette grandeur présente un caractère assez arbitraire : elle représente exactement l'amélioration de l'approximation de l'énergie du système quand on passe de la fonction fg à la fonction symétrisée. La valeur de cette amélioration dépend tout naturellement de la qualité des fonctions f et g elles-mêmes. Or, il existe une gamme considérable de fonctions monoélectriques telles que f et g. On peut, par exemple, utiliser des fonctions hydrogénoïdes compte tenu ou non d'un certain effet d'écran qui peut lui-même être introduit par un procédé empirique (comme les règles de Slater) ou par une méthode variationnelle. Mais les meilleures fonctions du point de *vue énergétique* sont par définition, celles du champ self consistent.

Il faut rappeler que ces fonctions ne sont d'ailleurs définies qu'à une transformation linéaire orthonormée près. Les fonctions les plus couramment utilisées soit φ_k sont dites orbitales de symétrie et sont solution d'une équation de la forme

$$\mathcal{H}\varphi_k = \varepsilon_k\varphi_k,$$

où $\mathcal{H}$ est l'opérateur bien connu du champ self de Hartree, Fock et Dirac. Dans les cas simples, la fonction d'onde totale est approchée par une expression de la forme

$$\Psi(1, \ldots, n) = \text{dét}\,\varphi_k,$$

mais l'on peut remplacer les φ_k par des ζ_l définit par

$$\zeta_l = \Sigma_k c_{kl}\varphi_k.$$

Car sous réserve que cette transformation conserve l'orthonormalisation des φ_k, on a

$$\text{dét}\,\zeta_l = \text{dét}\,\varphi_k.$$

Si nous revenons au cas de deux électrons, on peut donc partir des fonctions

$$f = a\varphi_1 + b\varphi_2, \qquad g = a'\varphi_1 + b'\varphi_2$$

quels que soient a et b, a' et b', sous réserve que l'on ait

$$a^2 + b^2 = 1, \qquad a'^2 + b'^2 = 1, \qquad aa' + bb' = 0,$$

la fonction antisymétrisée

$$\Psi(1, 2) = \text{dét}\,fg$$

sera indépendante du choix des a, b, a', b'. Par conséquent, l'énergie totale du système sera également indépendante de ce choix après antisymétrisation.

Au contraire, cette énergie dépendra fortement de ce choix si on la calcule sur la fonction-produit fg, c'est-à-dire, avant antisymétrisation. La différence entre ces deux énergies, c'est-à-dire, l'énergie « d'échange » que nous préférons appeler énergie de corrélation de Pauli, différence entre un terme constant et un terme variable, sera donc dépendante du choix des coefficients a, b, a', b', ce qui souligne encore une fois son caractère arbitraire.

Lennard Jones et Pople [11] ont calculé l'énergie de répulsion de deux électrons dans un état décrit par une fonction

$$\text{dét}[2s, 2p].$$

Les éléments monoélectriques étant du type de Slater, l'énergie totale est de $0{,}1415Z$. L'énergie d'échange calculée directement à partir de $2s$ et $2p$ est de $-0{,}0401Z$ soit 28 pour 100 de l'énergie totale. Calculée à partir des orbitales équivalentes

$$f = \frac{1}{\sqrt{2}}[(2s) + (2p)], \qquad g = \frac{1}{\sqrt{2}}[(2s) - (2p)]$$

l'énergie d'échange n'est plus que de $-0{,}0035\,Z$ soit 2,4 pour 100 de l'énergie totale.

Brion et Daudel [12] ont montré que cette dernière valeur est le minimum possible de ce terme d'échange. C'est donc peut-être à un tel minimum que l'on pourrait, en général, s'adresser si l'on voulait définir univoquement l'énergie de corrélation de Pauli.

Bien entendu, même lorsque l'on approche la fonction d'onde d'un système d'électrons à l'aide d'un déterminant construit sur les meilleures fonc-

tions monoélectriques du point de vue énergétique (celles du champ self consistent de Hartree, Fock et Dirac), on peut se trouver encore assez éloigné de la véritable fonction d'onde.

On se rend intuitivement compte de ce fait en notant qu'un tel déterminant est somme toute assez mal adapté aux termes en $\frac{1}{r_{ij}}$ figurant dans le potentiel d'interaction car ce déterminant ne contient pas explicitement les variables r_{ij}.

On peut améliorer la représentation de fonction d'onde en y introduisant les variables r_{ij} comme l'a fait par exemple Hylleraas [13] ou en utilisant un développement en série de fonctions, comme on le fait dans la méthode dite dangereusement des interactions de configurations [14]. L'énergie calculée se rapproche encore de l'énergie exacte d'une quantité qui mesure ce que l'on appelle quelquefois l'énergie de corrélation électrostatique.

A propos de la notion de couche. — Il est bien connu que la notion de niveau électronique d'un atome prise en tant que grandeur d'état, n'a pas encore reçu de définition théorique rigoureuse. Plusieurs raisons profondes s'opposent à une telle définition. La définition expérimentale des niveaux énergétiques est généralement donnée par l'identification à certaines énergies d'ionisation. Ces grandeurs ne sont pas des grandeurs caractérisant l'état d'un atome mais des différences entre les énergies de deux systèmes, l'atome et un de ses ions. En second lieu, l'indiscernabilité des électrons exige que chacun d'eux possède la même énergie moyenne, la même distance moyenne au noyau. Cette situation n'est pas compatible avec l'existence de niveaux énergétiques distincts sur lesquels seraient placés les électrons. Notons enfin, que seule l'énergie *totale* d'un atome est quantifiée et qu'il n'est donc pas du tout rigoureux d'associer des nombres quantiques individuels aux constituants du système.

Il n'est donc pas inutile de réfléchir sur l'origine du succès du modèle en couche, en flagrante opposition apparente avec les principes les plus fondamentaux de la Physique. La théorie qui semble cadrer le mieux avec ce modèle est sans doute celle du champ self consistent, où l'on approche la fonction d'onde avec l'expression

$$\Psi = \text{dét}\, \varphi_k.$$

Les φ_k étant solution de l'équation

$$\mathcal{H} \varphi_k = \varepsilon_k \varphi_k.$$

Une série de coïncidences ont entraîné l'apparition d'un langage très dangereux.

Cette équation ressemble à l'équation de Schrödinger, de sorte qu'on est conduit à penser que φ_k est une onde associée à l'un des électrons du système, auxquels on est tenté d'attribuer les nombres quantiques k. Par ailleurs ε_k donne une assez bonne approximation d'un des potentiels de l'atome, ce qui conduit à dire que ε_k est l'énergie d'un niveau électronique sur lequel évolue l'électron. Enfin chaque électron étant muni ainsi de ses nombres quantiques et de son onde personnelle, on est tenté de considérer que chaque corpuscule présente une certaine indépendance. On parle quelquefois du modèle à particules indépendantes.

Tout ce langage est regrettable puisqu'il est contraire au principe d'indiscernabilité mis à la base même de la théorie. Voyons comment on peut procéder pour éviter cet écueil.

Notons d'abord que l'opérateur $\mathcal{H}$ du champ self n'a pas la forme d'un hamiltonien, la ressemblance de cette équation avec une équation de Schrödinger n'est que formelle. Il faut ensuite désolidariser les orbitales φ_k et les électrons. Il est nécessaire d'introduire autant d'orbitales que d'électrons parce que la fonction Ψ doit contenir autant de variables électroniques que d'électrons. Mais la forme même du Ψ montre que l'un quelconque des φ_k agit à la fois sur toutes les variables électroniques et que réciproquement une variable électronique donnée figure à la fois dans tous les φ_k.

Il n'y pas association d'un φ_k à un électron : les nombres quantiques k caractérisent donc des orbitales, des éléments de fonction d'onde et non des corpuscules. En remplaçant le mot électron par le mot orbitale, on évitera donc déjà un certain nombre d'idées inexactes.

D'où vient alors que le retrait d'un électron mette en œuvre une énergie voisine d'un des ε_k? La réponse à cette question peut être trouvée dans la remarque suivante : si l'atome est assez volumineux, le retrait d'un électron changera peu l'opérateur $\mathcal{H}$ donc peu les φ_k. Mais la nouvelle fonction d'onde devra contenir une variable de moins. On pourra donc l'approcher en utilisant les mêmes fonctions φ_k sauf une. Ainsi, bien qu'il n'y ait pas correspondance entre un électron particulier et un φ_k, le retrait d'un électron peut être représenté par le retrait d'un φ_k dans la fonction d'onde. Notons finalement que, dire du modèle du champ self qu'il s'agit d'un modèle à particules indépendantes est trop catégorique : le calcul des φ_k tient, en effet, largement compte des interactions entre particules et nous avons vu que la forme même adoptée pour Ψ tient compte dans une certaine mesure des corrélations existant entre les particules.

En raisonnant ainsi plutôt sur les orbitales que sur les corpuscules, nous avons rappelé qu'il était possible d'éviter de regrettables contradictions. Mais le physicien y voit sans doute un inconvénient : l'orbitale est un être essentiellement mathématique : la fonction propre d'un certain opérateur. Les niveaux électroniques, les couches n'auraient-elles donc aucune signification physique directe ?

Pour répondre à cette question, nous avons

récemment, avec Mlle Brion et Mme Odiot [15] jeté les bases d'une théorie de la localibabilité des corpuscules dont nous voudrions donner ici les premiers résultats.

Introduisons d'abord la notion de loge.

Envisageons un système d'électrons par exemple. Découpons dans son espace un volume V et calculons la probabilité de rencontrer un électron et un seul de spin donné $\left(\text{soit } +\frac{1}{2}\frac{h}{2\pi}, \text{ soit } -\frac{1}{2}\frac{h}{2\pi}\right)$ dans ce volume. Si le volume est très petit il sera souvent vide et cette probabilité sera faible. S'il est très grand, il contiendra souvent plus d'un électron et ladite probabilité sera donc encore faible. Il y aura donc des volumes optima vis-à-vis de cette grandeur.

Admettons que le système soit dans un état à projection de spin bien définie. Soit p le nombre des électrons de spin $+\frac{1}{2}\frac{h}{2\pi}$ par exemple.

Découpons l'espace en p volumes V_i connexes ne se recouvrant pas, recouvrant tout l'espace et tels que l'on puisse évaluer dans chacun d'eux la probabilité P_i de rencontrer un électron et un seul de spin $+\frac{1}{2}\frac{h}{2\pi}$. Nous dirons que l'espace est découpé en loges d'ordre 1 et de caractère $+\frac{1}{2}\frac{h}{2\pi}$ vis-à-vis du système. La même définition s'applique évidemment au spin $-\frac{1}{2}\frac{h}{2\pi}$.

La quantité

$$\Omega = \sum_i P_i$$

est supérieurement bornée par la valeur p.

Posons

$$\eta = \frac{p - \Omega}{p},$$

η est une quantité positive que nous appellerons le défaut de localisation du découpage. Nous dirons qu'un découpage est d'autant meilleur que η est petit.

L'ensemble des découpages en loges ainsi défini pour un système dans un état donné est très vaste. Dans la pratique nous nous contenterons le plus souvent de considérer des sous-ensembles en imposant au système de découpage des conditions supplémentaires s'inspirant par exemple des propriétés de symétrie du système.

Il deviendra alors souvent possible de trouver le (ou les) meilleur (s) découpage (s) d'un tel sous-ensemble, c'est-à-dire celui (ou ceux) qui correspond (ent) au minimum de η quand il existe.

Soit

$$\Psi(x_1, \omega_1, x_2, \omega_2, \ldots, x_j, \omega_j, \ldots, x_n, \omega_n)$$

la fonction d'onde décrivant l'état du système considéré où x_j note l'ensemble des coordonnées d'espace associées au jème électron.

La probabilité P_i de trouver un électron et un seul de spin $+\frac{1}{2}\frac{h}{2\pi}$ dans la loge V_i est donné par

$$P_i = C_p^n p \int_{V_i} d\tau_1 \int_{\text{espace-}V_i} d\tau_2 \ldots d\tau_p \int_{\text{espace}} d\tau_{p+1} \ldots d\tau_n \times \int_{+\frac{1}{2}\frac{h}{2\pi}} d\omega_1 \ldots d\omega_p \int_{\frac{1}{2}\frac{h}{2\pi}} d\omega_{p+1} \ldots d\omega_n [\Psi]^2.$$

Le calcul est donc réalisable quelle que soit la forme de Ψ et l'on voit dès maintenant que les discussions liées aux loges pourront se faire à partir de n'importe quel type de fonction d'onde.

Envisageons le premier état triplet de l'hélium décrit par une fonction de Hylleraas. On obtient un découpage en loges en partageant l'espace à l'aide d'une sphère concentrique au noyau. On montre sans peine que le meilleur de ces découpages correspond à la sphère de rayon $R = 1,7\, a_0$ et que la probabilité de rencontrer un électron et un seul dans cette sphère est de 0,93.

Il est naturel d'associer cette sphère à la couche K et, à la couche L, le reste de l'espace.

D'une façon générale, la théorie des loges permet l'association de domaines aux différentes couches d'un atome.

On peut alors définir l'énergie *moyenne* d'un électron *dans un tel domaine* [16]

$$\overline{E}_V = \frac{\int_{\mathbf{r}_i \in V} \Psi^* H_i \Psi \, d\sigma}{\int_{\mathbf{r} \in V} \Psi^* \Psi \, d\tau},$$

$$H_i = -\frac{h^2}{8\pi^2 m}\Delta_i - \frac{Ze^2}{r_i} + \sum_j \frac{e^2}{r_{ij}}.$$

Le symbole $\mathbf{r}_i \in V$ signifiant que le $i^{\text{ième}}$ groupe de coordonnées reste intérieur à V.

On trouve qu'au moins dans des cas simples, les E_V comme les ε_k donnent une bonne approximation des énergies d'ionisation I comme le montre le tableau ci-dessous (²) relatif à l'état triplet de l'hélium.

Couche.	ε [17].	$\overline{E}_V$	I [17].
K	—3,469	—3,565	—3,352
L	—0,30	—0,43	—0,35

Cette observation attire quelques remarques. Il faut d'abord noter que les E_V peuvent être calculés à partir de n'importe quelle fonction d'onde, en particulier à partir de la fonction exacte alors que les ε_k ne sont définies que dans l'approximation du déterminant de Slater.

Par ailleurs les $\overline{E}_V$ présentent une signification

(²) Les valeurs figurant dans ce tableau sont données en unités atomiques.

géométrique simple : le fait qu'ils peuvent donner dans certains cas une approximation des énergies d'ionisation montre que le départ d'un électron d'un système peut ne modifier l'organisation respective des électrons du système que dans une région assez bien délimitée du système. L'origine et la nature de la notion de couche semble alors peut-être un peu plus claire.

La répulsion coulombienne entre les électrons et l'antisymétrie de l'onde de probabilité entraînent l'existence de corrélations entre les positions de ceux-ci et les conduit à occuper *en moyenne* une certaine loge, un certain domaine V d'espace. On montre d'ailleurs que le volume de ce domaine est relié au potentiel électrique moyen P qui y règne par la relation

$$\bar{P}^{\frac{3}{2}} V = \text{const.}$$

Ces volumes viennent paver régulièrement l'espace entourant le noyau de l'atome et forment des couronnes sphériques successives associables aux couches. Les réorganisations qui peuvent se produire dans le cortège au cours des ionisations ou des excitations se traduisent surtout dans certaines des couronnes dont la charge varie ainsi par quantité quasi entière.

Il en résulte qu'en première approximation, la variation d'une grandeur totale associée à l'atome est liée aux valeurs moyennes qu'elle prend dans les différents domaines considérés.

Ainsi les nombres quantiques individuels supplémentaires que l'on introduit dans les théories approximatives auraient pour origine des valeurs moyennes quasi entières effectuées dans des régions de l'espace que l'on peut définir grâce aux corrélations existant entre les positions des corpuscules. Mais ces recherches ne sont qu'à leur début et rencontrent des difficultés sur lesquelles nous n'avons pas le temps de nous étendre. Il nous semble cependant que la technique des loges qui permet de « visualiser » sans les déformer les conclusions d'une application rigoureuse de la Mécanique ondulatoire devrait rendre différents types de service : permettre une compréhension meilleure, plus intuitive, plus physique des phénomènes, entraîner un assouplissement de la théorie; fournir un nouveau point de départ pour le choix, donc le calcul des fonctions d'onde.

Le cortège électronique des atomes dans les théories relativistes. — Pour terminer cette mise au point, il nous reste à dire un mot des effets de la relativité. Il n'existe pas encore d'électrodynamique relativiste entièrement satisfaisante.

Dans le cas d'un seul électron les équations de Dirac, donnent une bonne solution du problème et montrent que l'effet de la relativité ne devient important que pour les couches profondes des atomes présentant un numéro atomique élevé. Pour les systèmes d'électrons la relativité n'a jamais été introduite de façon rigoureuse. Le meilleur calcul réalisé dans ce sens consiste à introduire dans les équations de Dirac caractérisant une orbitale le potentiel statistique de Thomas Fermi.

Le tableau suivant compare les valeurs des énergies ε associées ainsi aux différentes orbitales K selon les calculs de Reitz [18] et les énergies d'ionisation correspondantes ([3]).

	ε_k.	I_k.
Cuivre...............	—0,017 619	—0,017 62
Indium...............	—0,549 95	—0,547 2
Uranium...............	—0,230 46	—0,227 6

([3]) Exprimées en prenant comme unité l'énergie au repos de l'électron.

BIBLIOGRAPHIE.

[1] Imaginé par DAUDEL, BENOIST, JACQUES et JEAN. — *C. R. Acad. Sc.*, 1947, **224**, 1427.
[2] DAUDEL. — *Revue Scientifique*, 1947, **85**, 162.
[3] SEGRÉ. — *Phys. Rev.*, 1947, **71**, 274.
[4] DAUDEL. — Interaction entre le noyau et son cortège, p. 59, *Revue d'Optique*, éditeur.
[5] BOUCHEZ, DAUDEL et DAUDEL et MUXART. — *C. R. Acad. Sc.*, 1948, **227**, 525.
LEININGER, SEGRÉ et WIEGAND. — *Phys. Rev.*, 1949, **76**, 897.
[6] BAINBRIDGE, GOLDHABER et WILSON. — *Phys. Rev.*, 1951, **89**, 1261.
[7] ALBERS-SCHÖNBERG, ALDER, HEER, NOVEY et SCHERRER. — *Phys. Rev.*, 1953, **91**, 1287.
[8] LENNARD JONES. — *J. Chem. Phys.*, 1952, **20**, 1024.
[9] HYLLERAAS. — *Z. Physik*, 1930, **65**, 209.
[10] SEMENCENKO. — *Usp. Him.*, 1952, **21**, 714 et BATUEY. — *Zu. Fisz.*, 1952, **26**, 1694 ont insisté sur ce point.
[11] LENNARD-JONES et POPLE. — *Proc. Roy. Soc.*, 1950, A **202**, 166.
[12] BRION et DAUDEL. — *C. R. Acad. Sc.*, 1953, **237**, 567.
[13] HYLLERAAS. — *Z. Physik*, 1930, **65**, 209.
[14] *Voir* par exemple GREEN L. C., MULDER MM., UFFORD, C. W., SLAYMAKER E. KRAWITZ E. et MERTZ R. T. — *Phys. Rev.*, 1952, **85**, 65.
[15] DAUDEL, ODIOT et BRION. — *J. Chim. Phys.*, 1954, **51**, 74.
[16] BRION, DAUDEL et ODIOT *J. Chim. Phys.*, 1954, **51**, 358.
[17] D'après WILSON et LINDSAY. — *Phys. Rev.*, 1935, **47**, 681.
[18] REITZ. — *Phys. Rev.*, 1950, **77**, 10.

LA CAPTURE L ET LA MESURE DU RAPPORT $\frac{\text{capture } L}{\text{capture } K}$.
QUELQUES EXPÉRIENCES SUR ^{79}Kr. DISCUSSION DE L'ÉTAT ACTUEL DE LA QUESTION

Par Pierre RADVANYI,
Physique et Chimie nucléaires. Collège de France, Paris.

Summary. — L to K capture ratio of ^{79}Kr was measured with a cloud chamber and with a proportional counter and found to be higher than expected theoretical value. Possible reasons for such a disagreement are discussed. Other results would not be in contradiction with hypothesis of a systematic discrepancy with theory.

1. **Introduction**. — La capture d'électrons orbitaux par les noyaux, et en particulier la capture d'électrons L, a été étudiée théoriquement avant d'avoir été mise en évidence expérimentalement.

Les premiers travaux théoriques ont été effectués par Yukawa et Sakata en 1935 [1], et indépendamment d'eux en 1936, par Möller [2] et par Bethe et Bacher [3]. Les expériences d'Alvarez [4] sur la capture K suivirent peu après. La capture L a été examinée plus en détail théoriquement par Marshak en 1942 [5] mais n'a été mise en évidence pour la première fois qu'en 1949 par Pontecorvo, Kirkwood et Hanna [6] sur l'argon 37.

Lorsque le noyau résultant de la capture ne se trouve pas dans un état excité, la capture d'électrons orbitaux ne se manifeste à l'extérieur que par le réarrangement atomique consécutif. Une donnée particulièrement intéressante est le rapport d'embranchement : $\frac{\text{probabilité de capture } L}{\text{probabilité de capture } K} = \frac{\lambda_L}{\lambda_K}$.

Les expériences sur la capture L se heurtent à un certain nombre de difficultés :

a. Nécessité de comparer l'intensité de rayonnements d'énergies assez différentes.

b. La détermination de l'intensité des raies de faible énergie comme les raies L (¹) peut comporter des erreurs importantes.

c. Le rayonnement L peut suivre aussi bien la capture K que la capture L ou une conversion éventuelle; il faudra donc faire la part de ces divers processus.

d. Dans l'interprétation du rayonnement L, plus particulièrement pour les noyaux lourds, on doit distinguer ce qui provient des différentes sous-couches L, en tenant compte des transitions sans rayonnement du type Coster-Kronig [7].

e. Pour l'analyse du réarrangement des électrons atomiques, il est nécessaire de connaître un certain nombre de constantes atomiques, notamment les rendements de fluorescence.

(¹) *Note.* — Nous appellerons raies K, ou raies L, les processus ayant une énergie de l'ordre de grandeur de l'énergie de liaison, E_K ou E_L, des électrons K ou des électrons L (photons K : $K \to L$..., électrons Auger K : $K \to LL$..., ou photons L : $L \to M$..., électrons Auger $L : L \to MM$...).

Quand le noyau final est excité, on peut avoir avantage à utiliser une méthode indirecte pour déterminer le rapport $\frac{\lambda_L}{\lambda_K}$. On compare alors le nombre de captures K au nombre total de transitions déduit du nombre de rayons γ nucléaires ou d'électrons de conversion interne; mais il faut que le schéma de désintégration soit bien connu.

Par ailleurs, il a été possible de mettre en évidence l'effet d'une ionisation L_I de ^{7}Be sur la probabilité totale de capture de cet isotope. La période de décroissance de ^{7}Be n'est pas tout à fait la même selon que le bérylium se trouve à l'état métallique ou à l'état d'ion dans un composé chimique [8], [9].

Pontecorvo et al. [6] avaient étudié la capture L de ^{37}A introduit comme source gazeuse dans un compteur proportionnel. Par suite de l'échappement de photons K du compteur, la raie L est complexe : les impulsions d'énergie $E_{L_{II}}$ et $E_{L_{III}}$ (200 eV) sont essentiellement dues à la capture K, celles d'énergie E_{L_I} (240 eV) sont dues à la capture L_I (qui doit être, d'après la théorie, de beaucoup la plus probable des captures L). En remplaçant l'argon par du xénon comme gaz de remplissage, l'échappement de photons K devient très petit et la raie L est alors due presque exclusivement à la capture L. Le sommet de la raie L se déplace effectivement vers les grandes énergies.

Jusqu'à présent, les mesures de $\frac{\lambda_L}{\lambda_K}$ sont encore peu nombreuses et comportent souvent une grande marge d'erreur.

2. **Calcul théorique du rapport** $\frac{\lambda_L}{\lambda_K}$. — Pour les transitions permises, les probabilités de capture λ_K et λ_L peuvent s'écrire, d'après Marshak [5] :

$$\lambda_K = \frac{G^2}{4\pi^2} |M|^2 (W_0 + W_K) g_K^2,$$

$$\lambda_L = \frac{G^2}{4\pi^2} |M|^2 (W_0 + W_L)^2 \left(g_{L_I}^2 + f_{L_{II}}^2\right),$$

W_0 représente l'énergie qui serait disponible pour l'émission β^+ en unités m_0c^2 (y compris l'énergie correspondant à la masse au repos du positon)

W_K et W_L sont les énergies des électrons capturés (énergie correspondant à la masse au repos diminuée de l'énergie de liaison). Dans le rapport $\frac{\lambda_L}{\lambda_K}$, la constante G et l'élément de matrice nucléaire de la transition $|M|$ s'éliminent.

g et f sont les valeurs à la distance R (rayon nucléaire) du centre du noyau des fonctions radiales. g_K^2 et $g_{L_1}^2$ représentent à peu près les probabilités de présence des électrons K et L_1, respectivement, à la surface du noyau.

$f_{L_{II}}^2$ peut être calculé par l'expression approchée

$$f_{L_{II}}^2 = \frac{3}{16}\alpha^2 Z_{\text{eff}}^2 g_{L_1}^2 \qquad \left(\alpha = \frac{1}{137};\ Z_{\text{eff}} = Z - 4,15\right).$$

On voit, d'après la théorie, que la capture d'un électron L_{II} $\left(\text{électron } p \text{ avec } j = \frac{1}{2}\right)$ doit être beaucoup moins importante que la capture d'un électron L_1 (électron s). Il ne doit pas y avoir de capture L_{III} pour les transitions permises.

Il est plus rigoureux de prendre pour $g_{L_1}^2$ et g_K^2 les fonctions de Hartree pour Z petit et celles de Reitz dans le domaine relativiste ($Z \geqq 25$).

Pour le calcul de ces fonctions, on ajoute au potentiel du noyau un autre potentiel représentant le champ moyen créé par les autres électrons atomiques.

Des courbes de $\frac{g_{L_1}^2}{g_K^2}$ ont été données par Rose et Jackson [10]. Mme Benoist [11] a comparé les résultats des différents calculs théoriques de $g_{L_1}^2$ et g_K^2.

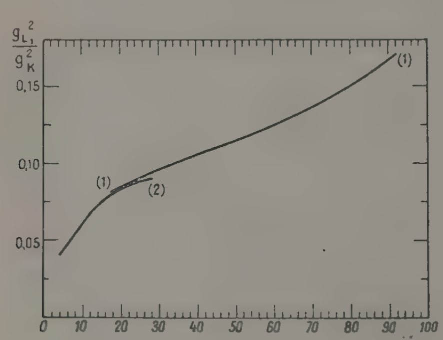


Fig. 1. — Courbes donnant le rapport $\frac{g_{L_1}^2}{g_K^2}$ à la limite du noyau en fonction de Z.
Courbe (1) : Fonctions d'onde relativistes de Reitz.
Courbe (2) : Fonctions d'onde de Hartree.
(Courbes tirées de l'article de Rose et Jackson [10].)

A l'intérieur du noyau, le potentiel du champ du noyau ne doit plus être en $\frac{1}{r}$. Malcolm et Strachan [12] ont calculé d'une manière approchée les corrections à apporter aux valeurs de g_K^2, $g_{L_1}^2$ et $f_{L_{II}}^2$. La correction sur $\frac{g_{L_1}^2}{g_K^2}$ est de quelques pour-cent; elle augmente légèrement avec Z.

En négligeant la capture L_{II} le rapport d'embranchement peut s'écrire

$$\frac{\lambda_L}{\lambda_K} = \frac{(W_0 + W_L)^2}{(W_0 + W_K)^2}\,\frac{g_{L_1}^2}{g_K^2}. \tag{1}$$

Si l'énergie de transition $(W_0 + 1)$ est grande par rapport à l'énergie de liaison K $\left(\frac{E_K}{m_0 c^2}\right)$, le facteur énergétique sera pratiquement égal à 1 et l'on aura $\frac{\lambda_L}{\lambda_K} \simeq \frac{g_{L_1}^2}{g_K^2}$. Si $W_0 + 1$ est très petit $\frac{(W_0 + W_L)^2}{(W_0 + W_K)^2}$ et $\frac{\lambda_L}{\lambda_K}$ peuvent devenir très grands. Enfin si $W_0 + 1 < \frac{E_K}{m_0 c^2}$ soit $W_0 + W_K < 0$, la capture K ne sera énergétiquement plus possible.

Les expressions sont plus compliquées pour les transitions interdites, et les calculs théoriques n'ont été faits que pour certains cas. La capture L_{III} peut alors avoir lieu. Marshak [5] a montré que dans ces conditions les captures L_{II} et L_{III} peuvent devenir plus importantes que les captures L_1 et K pour des transitions d'énergie petite.

3. **Nos expériences sur ^{79}Kr et leur interprétation.** — J'indiquerai maintenant les résultats des expériences sur la capture L de ^{79}Kr réalisées au laboratoire de Physique et Chimie nucléaires du Collège de France, sous la direction de M. le Professeur Joliot.

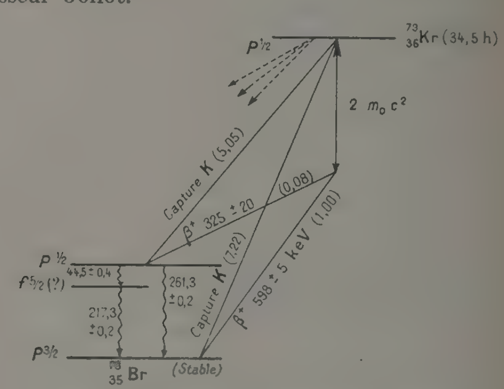


Fig. 2. — Schéma de désintégration de ^{79}Kr.

Le schéma de désintégration de ^{79}Kr (34,5 ± 0,2 h) a été étudié successivement par Bergström [13], par Radvanyi [14], [15] et par Thulin, Moreau et Atterling [16]. Les éléments de ce schéma qui paraissent actuellement acquis sont donnés sur la figure. Outre les deux transitions principales permises par émission β^+ et par capture, il doit y avoir un certain nombre d'autres embranchements — la plupart sans doute de faible intensité — corres-

pondant à 12 raies γ non portées sur le schéma.

Les chiffres entre parenthèses sont les intensités relatives calculées dans [15].

La position des raies γ de 44,5 et de 217,3 keV indiquée sur la figure paraît la plus vraisemblable d'après les résultats de l'excitation coulombienne de ^{79}Br obtenus par Heydenburg et Temmer [17].

Dans une première série d'expériences [15], [18] effectuées avec une chambre de Wilson à pression variable, le krypton 79 était introduit dans la chambre et le rapport $\frac{\lambda_L}{\lambda_K}$ était déterminé en comptant les nombres de trajectoires K, N_K, et de trajectoires isolées L, N_L, ayant leur origine dans un volume de mesure à l'intérieur de la zone éclairée de la chambre. Les mesures des cotes des extrémités des trajectoires étaient faites avec un stéréocomparateur de Pulfrich.



Fig. 3. — Trajectoires de positons et trajectoires K et L dues à la radioactivité de ^{79}Kr (émission β^+; capture K et L). Grossissement : 0,95.

Dans les conditions expérimentales (pression initiale d'air et de vapeur d'eau : 503 mm Hg; degré de détente : 1,34; facteur d'agrandissement des trajectoires : 2,1) les trajectoires K (de 9,8 à 13,5 keV) ont une longueur de l'ordre de 5 mm, et les trajectoires L (de 1,0 à 1,8 keV) avec une longueur approximative de 0,2 mm apparaissent comme de petits amas de gouttelettes à peu près sphériques. L'absorption des photons K dans l'air de la chambre est très petit. Les trajectoires K, dues en majeure partie à des électrons Auger K, proviennent de la capture K; les traces L isolées, dues en grande partie à des électrons Auger L, proviennent soit de la capture K, soit de la capture L.

On a alors

$$\frac{\lambda_L}{\lambda_K} = \frac{N_L}{N_K - N\Phi_K}(1 - R_K) - kR_K - 2k'R_L(1 - R_K).$$

$\frac{N\Phi_K}{N_K}$ représente une correction de 2 pour 100 due à l'absorption de photons K dans le volume de mesure. R_K est le rendement de fluorescence K; k est le nombre de vacances dans la couche L à la suite de l'émission d'un photon K; $2k'$ est le nombre de vacances dans la couche L à la suite de l'émission d'un électron Auger K; R_L est le rendement de fluorescence global de la couche L. R_L est ici très petit (0,03 d'après Burhop [7]) et le terme $2k'R_L(1 - R_K)$ est donc peu important. Par contre, le rapport d'embranchement $\frac{\lambda_L}{\lambda_K}$ est très sensible à la valeur de R_K.



Fig. 4. — Trajectoires K (traces allongées) et trajectoires L (traces ponctuelles). Grossissement : 3,25.

Nous avons obtenu

$$\frac{N_L}{N_K - N\Phi_K} = 1,80 \pm 0,16,$$

d'où avec $R_K = 0,57$ (d'après la formule semi-empirique publiée par Burhop [7]) et $k = 0,84$, $k' = 0,8$, on a

$$\frac{\lambda_L}{\lambda_K} = 0,27 \pm 0,09.$$

Dans une deuxième série d'expériences [19], [15] réalisées en collaboration avec M. Michel Langevin, nous avons utilisé un compteur proportionnel de grand volume dans lequel était introduit le krypton actif. Comme l'absorption des photons K dans le volume utile du compteur est très difficile à calculer d'une manière exacte il fallait se placer dans des conditions expérimentales où le compteur absorbe ou bien tous les photons K, ou bien très peu d'entre eux. Ne pouvant pas réaliser la première condition, nous avons choisi la deuxième solution. Il fallait alors, d'autre part, que le parcours des électrons Auger dans le gaz du compteur soit aussi petit que possible et que l'échappement des photons L soit réduit. Nous avons donc utilisé comme gaz de remplissage du propane (à une pression voisine de la pression atmosphérique) qui convenait le mieux à ces expériences, que M. Michel Langevin vous exposera en détail au cours de sa Communication.

Dans ces conditions, comme avec la chambre de Wilson, une partie de la raie L est due à la capture K, et le rendement de fluorescence R_K intervient dans la détermination de $\frac{\lambda_L}{\lambda_K}$. On a

$$\frac{\lambda_L}{\lambda_K} = (1,03)\frac{N_L}{N_K}(1 - R_K) - kR_K.$$

Le facteur 1,03 permet de tenir compte de quelques petites corrections.

La comparaison de la surface des raies L et K donne

$$(1,03)\frac{N_L}{N_K} = 1,71 \pm 0,07,$$

d'où on tire

$$\frac{\lambda_L}{\lambda_K} = 0,26 \pm 0,03.$$

Ce résultat confirme et précise celui obtenu avec la chambre de Wilson. Or le calcul, d'après la théorie, de $\frac{\lambda_L}{\lambda_K}$ pour les deux transitions principales de ^{79}Kr (le facteur énergétique est sensiblement égal à 1), ne donne que $\frac{\lambda_L}{\lambda_K} = 0,105$.

J'ai cherché à interpréter cet écart entre expériences et théorie [15]. Trois explications semblent possibles et pourraient d'ailleurs intervenir toutes à la fois.

A. La première possibilité est de mettre en cause la valeur du rendement de fluorescence utilisée dans l'interprétation de nos résultats. Le rapport $\frac{\lambda_L}{\lambda_K}$ est très sensible à la valeur de R_K; si celle-ci était en réalité supérieure de 10 pour 100 à la valeur utilisée de 0,57, l'écart disparaitrait. M. Rose pense que l'on peut inverser l'interprétation de nos expériences et, prenant comme base le rapport $\frac{\lambda_L}{\lambda_K}$ calculé d'après la théorie, tirer des résultats de nos mesures la valeur de R_K avec une assez grande précision. On aurait alors pour $Z = 35$, $R_K = 0,63 \pm 0,01$. Il serait cependant nécessaire avant de pouvoir utiliser cette méthode pour déterminer les rendements de fluorescence que le calcul théorique de $\frac{\lambda_L}{\lambda_K}$ soit expérimentalement vérifié.

M. Burhop a fait remarquer dans une lettre que si, pour établir la courbe semi-empirique de R_K en fonction de Z, on n'utilise que les résultats des mesures de R_K pour Z compris entre 24 et 46 (au-delà les effets relativistes peuvent avoir un effet appréciable) on arrive à $R_K = 0,59$ pour le brome.

Laskar [20] a calculé R_K d'après des mesures sur les largeurs de raies X; d'après ce calcul on aurait pour $Z = 35$, $R_K = 0,565$.

Enfin, cette année, ont paru de nouvelles mesures de R_K faites par C. E. Roos [21] sur huit éléments de Z compris entre 40 et 50. Ces déterminations comportant une erreur de 3 pour 100, semblent être les plus précises des mesures effectuées jusqu'à maintenant sur des éléments moyens. Par extrapolation jusqu'à $Z = 35$ on arrive à $R_K = 0,555$. D'après ces derniers résultats, il semblerait donc que l'écart observé pour $\frac{\lambda_L}{\lambda_K}$ ne puisse être expliqué que très partiellement par l'utilisation d'un rendement de fluorescence K trop faible.

B. Une autre explication est possible en faisant intervenir les nouveaux embranchements de capture de ^{79}Kr correspondant aux raies γ mises en évidence par Thulin et al. [16]. Si plusieurs de ces embranchements (indiqués en pointillé sur le schéma) étaient constitués par des transitions interdites ayant un rapport $\frac{\text{capture } L}{\text{capture } K}$ partiel élevé, on pourrait avoir un rapport $\frac{\lambda_L}{\lambda_K}$ global plus grand que 0,105

Cependant, cette explication se heurte actuellement à deux difficultés : les deux transitions principales de ^{79}Kr sont permises et une transition interdite doit être en principe beaucoup moins probable qu'une transition permise; il faudrait que plusieurs transitions interdites participent à la capture L totale. D'autre part, d'après Marshak [5], le rapport $\frac{\lambda_L}{\lambda_K}$ d'une transition interdite est d'autant plus grand que l'énergie disponible est plus petite; il ne semble pas que les nouveaux embranchements de ^{79}Kr aient des énergies de transition très petites, et d'ailleurs le facteur énergétique tendrait alors à diminuer encore davantage l'intensité absolue de telles transitions.

Il serait nécessaire de mesurer directement les intensités relatives des différentes raies γ, ce qui n'a pu encore être fait. D'autre part, aucun calcul théorique de $\frac{\lambda_L}{\lambda_K}$ ne semble avoir été publié jusqu'ici pour certaines transitions interdites intéressantes, notamment pour les transitions une fois interdites avec $\Delta J = 0, 1$, oui.

C. Il semble enfin nécessaire de voir s'il n'y a pas une raison plus profonde donnant un écart systématique entre les valeurs théoriques et les valeurs expérimentales de $\frac{\lambda_L}{\lambda_K}$. Si une telle explication était correcte, d'autres radioisotopes que ^{79}Kr présenteraient un rapport d'embranchement $\frac{\lambda_L}{\lambda_K}$ plus élevé que ne le prévoit actuellement la théorie. Il est donc utile de faire un examen critique des différents résultats expérimentaux — malheureusement encore peu nombreux — publiés jusqu'ici. Ce sera l'objet du paragraphe suivant.

4. **Discussion des résultats expérimentaux sur la capture *L* actuellement connus.** — Pour que la comparaison avec la théorie soit possible, il faut que l'énergie de la transition étudiée soit connue. Or, la majorité des auteurs ont jusqu'à présent procédé en sens inverse. Admettant que la théorie était correcte, ils ont choisi pour leurs études des

corps se transformant uniquement par capture, pour lesquels on ne connaissait pas l'énergie disponible $(W_0 + 1)$; ils déduisaient ensuite de leurs mesures de $\frac{\lambda_L}{\lambda_K}$ l'énergie des transitions au moyen de la formule (1) en tirant $\frac{g_{L_1}^2}{g_K^2}$ des courbes théoriques.

Dans le tableau suivant figurent les différents résultats publiés jusqu'ici à ma connaissance. Il se trouve que dans tous ces cas, sauf ^{37}A, le rapport expérimental $\frac{\lambda_L}{\lambda_K}$ est plus grand que $\frac{g_{L_1}^2}{g_K^2}$. Lorsque les transitions étudiées paraissaient être permises et que leurs énergies n'étaient pas connues, les auteurs en ont toujours conclu, utilisant la formule (1), que l'énergie disponible était assez petite. Il serait intéressant de mesurer ces énergies par d'autres méthodes.

Le seul cas, jusqu'à présent, où l'accord avec la théorie paraît satisfaisant est celui de l'argon 37, le plus léger des corps étudiés dans ce sens [6]. L'erreur expérimentale doit être d'à peu près 25 pour 100. Il serait cependant possible qu'un écart systématique avec la théorie actuelle, s'il existe, augmente avec Z, ou bien soit particulièrement important dans certaines régions de Z.

Le résultat obtenu par Townsend [22] sur ^{65}Zn semble erroné : en effet l'extrapolation faite dans son expérience ne semble pas correcte; il ne paraît pas justifié non plus de négliger l'émission de photons K_β.

Un cas intéressant est celui de ^{103}Pd. En effet, Avignon [23] a mesuré avec un compteur proportionnel le rapport $\frac{\text{nombre de captures } K}{\text{nombre total de transitions}}$, d'où un rapport $\frac{\lambda_L}{\lambda_K} = 0{,}79 \pm 0{,}22$ et une énergie de transition de 36 ± 5 keV. Or, il y a quelques mois, et indépendamment du travail précédent, Rietjens, van den Bold et Endt [24] ont étudié des rayonnements γ peu intenses de ^{103}Pd et en ont conclu à une énergie d'environ 520 keV pour la transition principale. Une telle énergie devrait conduire, d'après la théorie, à $\frac{\lambda_L}{\lambda_K} = 0{,}12$.

Des mesures de $\frac{\lambda_L}{\lambda_K}$ avec une marge d'erreur relativement faible ont été faites sur ^{109}Cd et ^{125}I où les énergies de transition n'étaient pas connues [25], [26]. Les auteurs ont trouvé des rapports $\frac{\lambda_L}{\lambda_K}$ relativement élevés et en ont tiré des énergies de désintégration petites.

Parmi les autres radioéléments du tableau ci-dessous, on peut remarquer aussi les mesures effectuées sur les transuraniens [33], [34], [35]. Pour ces éléments, les énergies de transition peuvent être connues par des chaînes fermées de désintégrations et par des études systématiques de la radioactivité α. Il ne semble pas que des transitions interdites puissent suffire à expliquer les valeurs élevées de $\frac{\lambda_L}{\lambda_K}$ obtenues pour ^{234}Np et ^{236}Np.

Conclusions. — Il n'est pas possible de dire que le calcul de $\frac{\lambda_L}{\lambda_K}$ d'après la théorie actuelle se trouve vérifié par les résultats expérimentaux connus jusqu'ici. Ces résultats ne seraient pas en contradiction avec l'hypothèse d'un écart systématique appréciable avec la théorie. De nouvelles expériences sur d'autres radioéléments, dans des cas où l'énergie de transition peut être déterminée indépendamment, sont nécessaires afin d'éclaircir cette question.

Si l'hypothèse que nous avons avancée se trouvait confirmée, il faudrait voir pourquoi la théorie actuelle, qui paraît reposer sur des principes de départ relativement simples, donnerait un résultat incorrect. Il ne semble pas qu'une modification de la valeur du rayon nucléaire utilisée ou l'introduction d'une correction différente du potentiel pour tenir compte des dimensions finies du noyau puisse avoir un effet très important sur $\frac{\lambda_L}{\lambda_K}$. L'effet du changement de charge du noyau sur le cortège électronique ne devrait pas non plus intervenir sensiblement pour des radioéléments plus lourds que ^{7}Be [11]. Faudrait-il admettre que la capture d'électrons de sous-couches du niveau L autres que L_1 serait plus importante que ne l'indique la théorie actuelle ?

Remarquons que dans les différents calculs de $\frac{\lambda_L}{\lambda_K}$ faits jusqu'ici, on a toujours utilisé un potentiel fonction uniquement de la distance r au centre du noyau. Doit-on penser qu'une telle approximation n'est plus suffisante pour calculer la densité des électrons dans le voisinage immédiat du noyau ? Même si la densité électronique à proximité du noyau était différente de celle qui est admise actuellement, ceci pourrait n'affecter que fort peu la distribution radiale des électrons à des distances r beaucoup plus grandes, de l'ordre de grandeur des rayons moyens des différentes couches électroniques, où la densité des électrons est beaucoup plus importante. Ainsi, un facteur nouveau intervenant pour le calcul de $\frac{\lambda_L}{\lambda_K}$ n'entraînerait pas nécessairement une modification des résultats théoriques sur la conversion interne ou des processus analogues.

Note sur épreuves. — Depuis la tenue du colloque, de nouvelles données expérimentales sur la capture L — que nous n'avons pas la place de discuter ici — ont été apportées sur les nuclides suivants :

Sur ^{37}A, par O. Kofoed-Hansen, *Phys. Rev.*, 1954, **96**, 1045.

Sur ^{195}Au, par A. Bisi et L. Zappa, *Nuovo Cimento*, 1954, **12**, 539.

Mesures du rapport d'embranchement $\frac{\lambda_L}{\lambda_K}$.

Nuclide étudié.	Valeur expérimentale de $\frac{\lambda_L}{\lambda_K}$.	Valeur théorique de $\frac{g_{L_1}^2}{g_K^2}$.	Nature de la transition.	Énergie de la transition		Auteurs (de l'étude sur la capture L du nuclide considéré).
				déduite de $\frac{\lambda_L}{\lambda_K}$.	déterminée par d'autres méthodes.	
$^{37}_{18}$A (35 j).........	0,085, erreur probablement ± 0,02	0,082	Permise	-	816 keV	Pontecorvo, Kirkwood et Hanna [6]
$^{65}_{30}$Zn (250 j).........	0,08 ± 0,04 (résultat sans doute erroné)	0,095	Une fois interdite ou interdite en L		1 342 et 228 keV	Townsend [22]
$^{79}_{36}$Kr (34,5 j).......	0,27 ± 0,09 0,257 ± 0,030	0,102	Permise	-	Transitions principales : 1 617 et 1 354 keV	Radvanyi [18], Langevin et Radvanyi [19]
$^{103}_{46}$Pd (17 j).........	0,79 ± 0,22	0,113	»	36 ± 5 keV	~ 520 keV d'après Rietjens et al. [24]	Avignon [23]
$^{109}_{48}$Cd (470 j).......	0,28 ± 0,05	0,114	»	$73 \left\{ \begin{matrix} +\ 12\ \text{keV} \\ -\ 6\ » \end{matrix} \right.$	-	Der Mateosian [25],
	0,32 ± 0,04			$67 \left\{ \begin{matrix} +\ 8\ \text{keV} \\ -\ 9\ » \end{matrix} \right.$		Bertolini et al. [26]
$^{113}_{49}$In (10^{12} ans).....	Capture L seulement (?)		-	≦ 28 keV (?)	-	Cohen [27]
$^{113}_{50}$Sn (112 j).......	Les auteurs ne peuvent pas conclure pour l'instant [29]	0,116	-			Thomas, Broyles et al. [28], Broyles, Thomas et al. [29]
$^{125}_{53}$I (60 j).........	0,30 ± 0,15	0,118	Permise	$80 \left\{ \begin{matrix} +160\ \text{keV} \\ -\ 18\ » \end{matrix} \right.$	-	Friedlander et Orr [30],
	0,23 ± 0,03			$108 \left\{ \begin{matrix} +\ 20\ \text{keV} \\ -\ 10\ » \end{matrix} \right.$		Der Mateosian [25]
$^{185}_{76}$Os (97 j).........	0,35 ± 0,15 ou bien 0,23 ± 0,15	0,148	Permise ou une fois interdite	~ 100 keV si permise		Miller et Wilkinson [31]
$^{202}_{81}$Tl (12,5 j).......	~ 1	0,155				Wilkinson [32]
$^{234}_{93}$Np (4,4 j).......	~ 1	0,18			~ 1,8 MeV	Orth et Street [33]
$^{235}_{93}$Np (410 j).......	~ 9	0,18	Permise ou une fois interdite		~ 0,17 MeV d'après [34] et [37]	James et al. [34]
$^{236}_{93}$Np (22 h)........	~ 2	0,18		-	~ 1,2 MeV	Orth et O'Kelley [35]
*$^{242}_{95}$Am (16 h).......	Transition directe vers ^{242}Pu : capture L seulement	-	-	≦ 126 keV (?)	-	O'Kelley et al. [36]

Sur ^{202}Tl, sur ^{202}Pb et sur ^{205}Pb, par J. R. HUIZENGA et C. M. STEVENS, *Phys. Rev.*, 1954, **96**, 548.

Sur ^{71}Ge et ^{133}Ba, par M. LANGEVIN, *C. R. Acad. Sc.* 1954, **239**, 1625; 1955, **240**, 289; *Thèse de Doctorat*, Paris, mai, 1955.

Sur ^{103}Pd. par P. AVIGNON, A. MICHALOWICZ et R. BOUCHEZ, *J. Physique Rad.*, 1955, **16**, 404.

Sur ^{181}W, par A. BISI, S. MICHALOWICZ et ZAPPA, *Nuovo Cimento*, 1955, **1** 651.

Sur ^{37}A, par M. LANGEVIN et P. RADVANYI, *C.R. Acad. Sc.*, 1955.

Ces résultats ne semblent cependant pas devoir modifier les différentes conclusions développées ci-dessus,

---

Discussion. — DAUDEL. — Parmi les approximations faites dans la théorie utilisée ici je pense que la négligence des corrélations existant entre les positions des électrons est la plus importante. Par ailleurs il faut se souvenir que l'accord entre théorie et expérience sur une valeur énergétique n'entraîne pas nécessairement l'exactitude de la fonction d'onde en tous les points de l'espace : une fonction peut être bonne du point de vue énergétique et mauvaise au voisinage du noyau.

WINTHER. — Kofoed-Hansen a trouvé un rapport $\frac{\text{capture } L}{\text{capture } K}$ d'environ 25 pour 100 pour ^{37}A. Le désaccord avec la théorie est sans doute lié à la négligence de la corrélation. Mme Benoist a montré que dans le cas de ^{7}Be la corrélation de Pauli multiplie par 2 ou 3 le rapport en question.

Réponse de M. Radvanyi aux observations présentées par M. Winther. — On peut se poser la question de savoir pourquoi la valeur de $\frac{\lambda_L}{\lambda_K}$ pour ^{37}A obtenue par Pontecorvo et al. est inférieure de beaucoup à celle déduite des expériences de Kofoed-Hansen. D'une part on peut penser à des erreurs expérimentales. Mais d'autre part Pontecorvo et al. indiquent avoir mesuré seulement le rapport $\frac{\text{capture } L_I}{\text{capture } K}$. Peut-être faut-il en conclure que la capture d'électrons L_{II} ou même L_{III} est beaucoup plus importante que ce qui est prévu actuellement par la théorie.

BIBLIOGRAPHIE.

[1] YUKAWA et SAKATA. — *Proc. Phys. Math. Soc. Japan*, 1935, **17**, 467 et 1936, **18**, 128.
[2] MØLLER. — *Phys. Z. Sowje tUnion*, 1937, **11**, 9 et *Phys. Rev.*, 1937, **51**, 84.
[3] BETHE et BACHER. — *Rev. Mod. Physics*, 1936, **8**, 82.
[4] ALVAREZ. — *Phys. Rev.*, 1937, **53**, 134; 1938, **53**, 606; 1938, **54**, 486.
[5] MARSHAK. — *Phys. Rev.*, 1942, **61**, 431.
[6] PONTECORVO, KIRKWOOD et HANNA. — *Phys. Rev.*, 1949, **75**, 982.
[7] BURHOP E. H. S. — The Auger Effect, Cambridge University Press, 1952.
[8] BOUCHEZ, DAUDEL P., DAUDEL R. et MUXART R. — *J. Physique Rad.*, 1947, **8**, 336 et *C. R. Acad. Sc.*, 1948, **327**, 525.
BOUCHEZ, DAUDEL P., DAUDEL R., MUXART R. et ROGOZINSKI A. — *J. Physique Rad.*, 1949, **10**, 201.
BENOIST, BOUCHEZ R., DAUDEL P. et R. et ROGOZINSKI. — *Phys. Rev.*, 1949, **76**, 1000.
[9] SEGRÉ. — *Phys. Rev.*, 1947, **71**, 274.
SEGRÉ et WIEGAND. — *Phys. Rev.*, 1949, **75**, 39 et 1949, **81**, 284.
LEININGER, SEGRÉ E. et WIEGAND. — *Phys. Rev.*, 1949, **76**, 897.
[10] ROSE et JACKSON. — *Phys. Rev.*, 1949, **76**, 1540.
[11] BENOIST. — *Thèse de Doctorat*, Paris, novembre 1952, *Ann. de Physique*, 1953, **8**, 593.
[12] MALCOLM et STRACHAN. — *Proc. Phil. Soc.*, 1951, **47**, 610.
MALCOLM. — *Phil. Mag.*, 1952, **43**, 1011.
[13] BERGSTRÖM. — *Arkiv för fysik*, 1952, **5**, n° 14, 191 et *Phys. Rev.*, 1951, **82**, 112.
[14] RADVANYI. — *C. R. Acad. Sc.*, 1952, **235**, 289.
[15] RADVANYI. — *Thèse de Doctorat*, Paris, juin 1954, *Ann. de Physique* (à paraître).
[16] THULIN, MOREAU et ATTERLING. — *Arkiv för fysik*, 1954, **8**, 229.
[17] HEYDENBURG et TEMMER. — *Phys. Rev.*, 1954, **93**, 906.
[18] RADVANYI. — *C. R. Acad. Sc.*, 1952, **235**, 428 et *J. Physique Rad.*, 1953, **14**, 25 S.
[19] LANGEVIN et RADVANYI. — *C. R. Acad. Sc.*, 1954, **238**, 77.
[20] LASKAR. — *C. R. Acad. Sc.*, 1953, **236**, 2.
[21] ROOS. — *Phys. Rev.*, 1954, **93**, 401.
[22] TOWNSEND. — *Thèse*, Université Washington Saint-Louis (Mo.), juin 1951.
[23] AVIGNON. — *J. Physique Rad.*, 1953, **14**, 637.
[24] RIETJENS, VAN DEN BOLD et ENDT. — *Physica*, 1954, **20**, 107.
[25] DER MATEOSIAN. — *Phys. Rev.*, 1953, **92**, 938.
[26] BERTOLINI, BISI, LAZZARINI et ZAPPA. — *Nuovo Cimento*, 1954, **11**, 539.
[27] COHEN. — *Nature*, 1951, **167**, 779.
[28] THOMAS, HAYNES, BROYLES et THOMAS. — *Phys. Rev.*, 1951, **82**, 961.
[29] BROYLES, THOMAS et HAYNES. — *Phys. Rev.*, 1953, **89**, 715.
[30] FRIEDLANDER et ORR. — *Phys. Rev.*, 1951, **84**, 484.
[31] MILLER et WILKINSON R. G. — *Phys. Rev.*, 1951, **83**, 1050.
[32] WILKINSON G. — *Phys. Rev.*, 1950, **79**, 1014.
[33] ORTH et STREET Jr. — 1951, Résultats non publiés, cités par HOLLANDER, PERLMAN et SEABORG, *Rev. Mod. Phys.*, 1953, **25**, 469.
[34] JAMES, GHIORSO et ORTH. — *Phys. Rev.*, 1952, **85**, 369.
[35] ORTH et O'KELLEY. — *Phys. Rev.*, 1951, **82**, 758.
[36] O'KELLEY, BARTON Jr., CRANE et PERLMAN. — *Phys. Rev.*, 1950, **80**, 293.
[37] M. S. FREEDMAN, A. H. JAFFEY, F. WAGNER Jr. et J. MAY, *Phys. Rev.*, 1953, **89**, 302.

MESURE AU COMPTEUR PROPORTIONNEL DU RAPPORT $\frac{\text{capture } L}{\text{capture } K}$ DU ^{79}Kr

Par Michel LANGEVIN,

Physique et Chimie nucléaires, Collège de France.

Summary. — L to K capture Ratio of ^{79}Kr was recently measured by use of a mixture of the radiative element with propane in a proportional counter. Some details are given on experimental procedure and results.

C'est en utilisant un compteur proportionnel que Pontecorvo et al. [1] ont apporté la preuve expérimentale de la capture L et ont pu mesurer le rapport $\frac{\text{capture } L}{\text{capture } K}$ de ^{37}A. La méthode consiste à incorporer l'élément radioactif gazeux au gaz de remplissage d'un compteur proportionnel dans des conditions expérimentales telles que l'on puisse déduire sans ambiguïté le rapport $\frac{\text{capture } L}{\text{capture } K}$ à partir du spectre d'impulsions obtenu.

Une expérience analogue a été entreprise en collaboration avec M. P. Radvanyi pour la mesure du rapport $\frac{\text{capture L}}{\text{capture K}}$ de ^{79}Kr [2], [3]. La capture K se manifeste par des électrons Auger et des photons de la série K du brome et tous les processus de réarrangement atomique en cascade. La capture L se manifeste par des électrons Auger L, par des photons L en très faible proportion et par le réarrangement consécutif. Dans le cas de ^{79}Kr, les raies de conversion présentes sont très faibles [4] et ne peuvent donc pas perturber ces phénomènes de manière appréciable.

Les conditions expérimentales les plus simples sont celles où tout le rayonnement émis par le gaz radioactif est absorbé dans le volume utile du compteur. Dans ce cas, il suffit de déterminer le nombre d'événements K (raie K + réarrangement consécutif) et L (raie L + réarrangement) correspondant respectivement au nombre de captures K et L de la source étudiée. Dans le cas du krypton, il n'est pas possible, sans travailler à haute pression, d'absorber tous les photons K dans le volume d'un compteur de taille raisonnable, même avec un gaz de Z élevé comme le xénon. Mais on peut s'arranger, au contraire, pour que seule une proportion très faible de photons K soit absorbée. Nous avons utilisé à cet effet un remplissage de propane, gaz dont les atomes constitutifs ont un Z petit, mais ont un poids moléculaire élevé, ce qui réduit l'effet de paroi dû aux électrons. Dans ces conditions, une proportion kR_k des captures K contribue à la raie L, k étant la proportion des photons K_α dans l'ensemble de la série K et R_K étant le rendement de fluorescence correspondant à la couche K. Le reste de la raie L est dû à la capture L. On peut donc mesurer ainsi la capture L totale et la capture K totale, et l'on a la relation

$$\frac{\text{capture } L}{\text{capture } K} = \frac{N_L}{N_K}(1 - R_K) - kR_K.$$

Nous avons déterminé les dimensions optima à donner au compteur pour une pression de propane voisine de la pression atmosphérique et nous avons

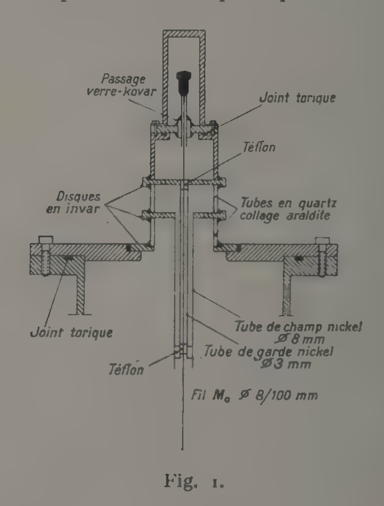


Fig. 1.

finalement adopté un diamètre de 8,4 cm et une longueur utile h de 35 cm. Dans ce cas, le nombre relatif d'électrons rencontrant la paroi ou sortant du volume utile est de

$$\frac{\Delta N}{N} = \frac{1}{2}\left(\frac{1}{R} + \frac{1}{h}\right)$$

si l est petit devant le rayon R du compteur, soit

$$\frac{\Delta N}{N} = 0{,}13\, l,$$

où l est la portée en centimètres des électrons dans le gaz. Pour le propane à 20° et 76 cm Hg, on a $l \simeq 0,1$ cm pour les électrons Auger K. L'effet de paroi représente donc une correction peu importante. Pour éviter les déformations du champ électrique aux extrémités du compteur qui seraient extrêmement gênantes en source gazeuse, nous avons utilisé la méthode préconisée par Cockroft et Curran [5]

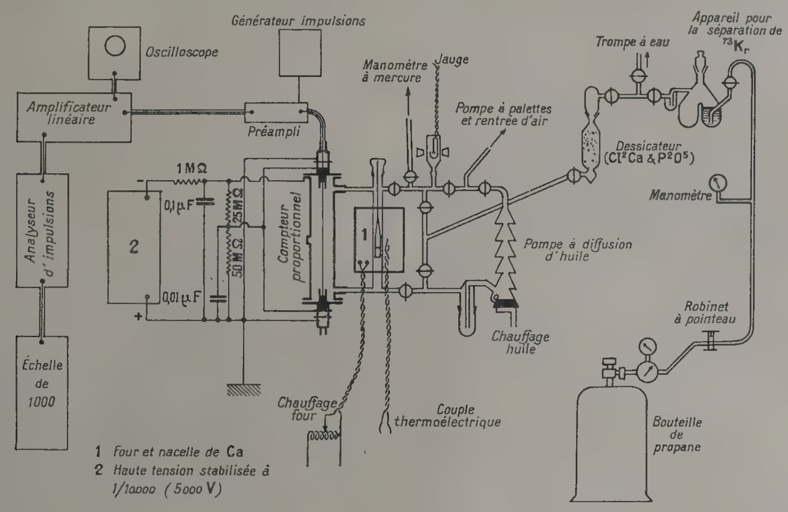


Fig. 2 *a*.

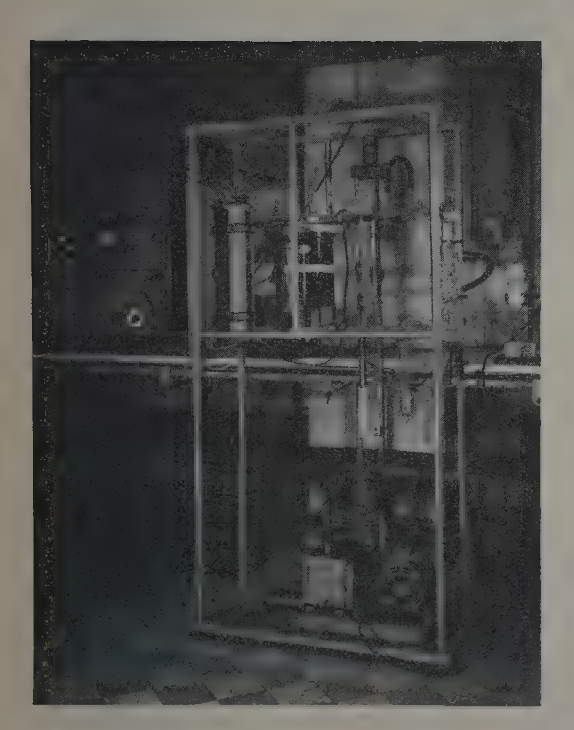


Fig. 2 *b*.

(*fig.* 1). Le propane utilisé provient de la régie autonome des pétroles de Saint-Gaudens et a été choisi pour son exceptionnelle pureté. Toutefois, pour éliminer les impuretés gênantes (attachement électronique) apportées lors du remplissage par les gaz occlus dans le BrNa irradié ou dues au dégazage des parois du compteur, le gaz est purifié par passage continu sur du calcium chauffé à 200-300°. La coque du compteur est portée à un potentiel négatif de l'ordre de 4 500 V (coefficient de multiplication gazeuse, 1000) fourni par une alimentation stabilisée au 1/10 000e. Le fil se trouve ainsi à un potentiel voisin des masses environnantes et l'on évite ainsi les difficultés occasionnées à cette tension par des amorces de décharge dans l'air [6]. Pour le schéma général de l'installation, voir la figure 2.

L'amplificateur utilisé doit présenter des effets de saturation réduits pour permettre l'étude précise de la raie L en présence d'un rayonnement K important, et avoir une fréquence de coupure élevée (2Mc) pour pouvoir accepter les taux de comptage nécessaires à une bonne précision statistique. Pour la construction de cet amplificateur, nous nous sommes inspirés du modèle mis au point par Magee et al. [7] en le modifiant pour obtenir une plus grande stabilité du gain et un bruit de fond plus réduit. Pour minimiser les effets de superposition des impulsions, nous avons utilisé des constantes de temps de différentiation et d'intégration de 1 μs, cette mise en forme étant complétée par la présence d'un temps mort de 5 μs, dans l'analyseur d'impulsion à bande variable utilisé [8].

Dans nos expériences, le pouvoir de résolution

obtenu est de 33 pour 100 pour la raie L (1,6 keV) et de 12 pour 100 pour la raie K (12,5 keV) (*fig.* 3). on obtient alors, après soustraction du fond continu, dû en majeure partie aux β^+ :

$$N_{L_{exp}} = 33\,000 \pm 1\,000 \text{ impulsions/mn} \quad (\textit{fig. } 4),$$
$$N_{K_{exp}} = 19\,850 \pm 200 \quad » \quad (\textit{fig. } 5)$$

ou alors

$$\frac{\text{capture } L}{\text{capture } K} = \frac{N_{L_{exp}}}{N_{K_{exp}}}(1.03)(1 - R_K) - kR_K.$$

1,03 étant un facteur de correction tenant compte de l'absorption de quelques photons K et de l'échappement de quelques photons L soit en prenant $k = 0{,}84$

$$R_K = 0{,}57, \qquad \frac{\text{capture } L}{\text{capture } K} = 0{,}26 \pm 0{,}03.$$

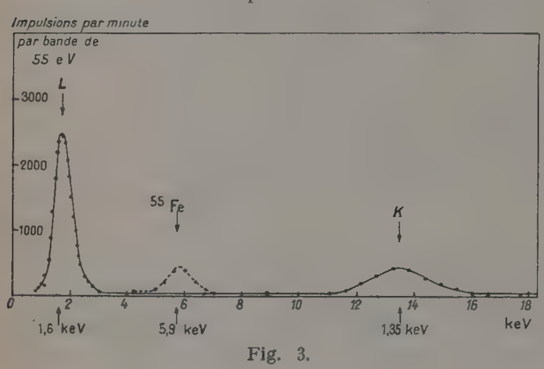


Fig. 3.

L'erreur expérimentale est due essentiellement à la mesure de la surface des raies (les erreurs statistiques étant négligeables, l'erreur provient surtout de l'évaluation de l'importance du fond continu que l'on défalque graphiquement).

De façon à éliminer les erreurs systématiques dans la déduction du fond continu on a comparé différentes expériences faites à pression et à activité variables.

On a de plus suivi la décroissance du ^{79}Kr (34,5 h) sur chaque raie et vérifié ainsi la pureté de la source.

Les différentes conclusions à tirer de cette étude ont déjà été exposées par P. Radvanyi [9], [10]. Du point de vue expérimental, il est évidemment regrettable que le rendement de fluorescence R_K joue un rôle aussi important dans l'interprétation des résultats. Il serait donc intéressant de reprendre des expériences analogues mais avec absorption dans le volume compteur de tous les rayonnements K et L. Les captures e étudiées dans ces conditions ont été celles de ^{37}A, de ^{109}Cd et de ^{125}I en utilisant pour ces deux dernières une source dispersée dans un cristal de NaI activé au thallium [11]. On ne connaît pas, sauf pour ^{37}A, l'énergie de la désintégration intéressée. Trois méthodes sont possibles pour connaître cette énergie :

1° Étude de l'énergie des électrons β^+ associés à la capture e quand ils existent;

2° Étude des seuils de réaction nucléaire en particulier des réactions p, n;

3° Étude du spectre continu γ lié à la capture e.

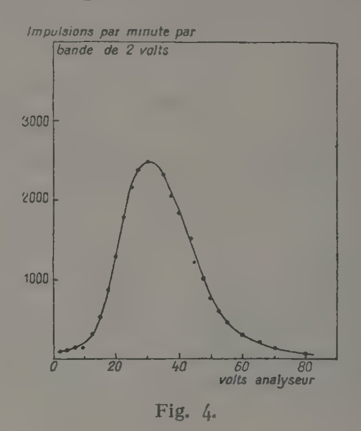


Fig. 4.

Nous avons l'intention d'effectuer une série d'expériences conjuguant la mesure du rapport $\frac{\text{capture } L}{\text{capture } K}$ à la détermination de l'énergie de la transition par une de ces méthodes (plus spécialement l'étude du spectre continu γ). On peut rapprocher l'importance anormale possible de la capture L mise en évidence dans cette expérience et les anomalies vers les basses énergies des rayonnements continus γ associés à la capture e, ces anomalies pouvant être interprétées par une contribution importante à l'échelle du phénomène de la capture L.

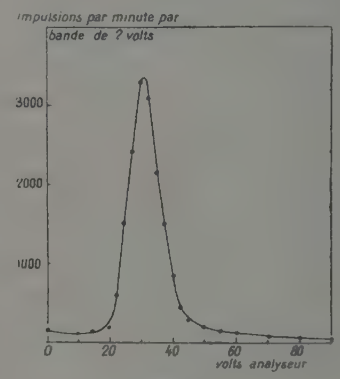


Fig. 5.

Il semble donc que dans la capture électronique, les couches éloignées du noyau jouent un rôle plus important que celui que l'on peut déduire d'un premier examen théorique de la question.

Intervention de M. Renard. — Avec un remplissage purifié d'une manière continue la largeur des raies est minimum et si le facteur de multiplication varie plus avec la tension appliquée au compteur. On peut stabiliser suffisamment cette tension.

Réponse de M. Langevin. — Le propane a l'avantage comme tous les gazs polyatomiques utilisés en comptage proportionnel de présenter une variation relativement lente du pouvoir de multiplication gazeuse en fonction de la tension. On peut donc l'utiliser pur tout en évitant l'inconvénient signalé par M. Renard.

Intervention de M. Bouchez. — La capture L pourrait-elle modifier d'une façon importante la forme du spectre γ de freinage interne jusqu'à des énergies grandes par rapport à celles de discontinuités d'absorption ? Par exemple, dans nos récentes expériences avec Michalovicz sur le ^{131}Cs, nous avons obtenu des résultats confirmant ceux de Saraf : il y a un grand excès de photons vers les basses énergies et cet excès apparaît déjà vers 150 keV alors que l'énergie maximum de la transition est environ 300 keV. Au contraire dans le cas du ^{55}Fe l'excès de photons de freinage semble seulement exister vers les très basses énergies pourrait être interprété par l'influence de capture d'électron autre que 1 *s*.

Intervention de M. Deutsch en réponse à M. Bouchez. — Il faut se rendre compte que l'effet de la couche L dans le rayonnement de freinage interne, bien qu'important, ne joue que comme un phénomène assez rare, mettons un cas sur 10 .

Intervention de M. Daudel. — Peut-on espérer mesurer prochainement le rapport $\frac{\text{capture } L}{\text{capture } K}$ dans le cas de ^{7}Be ?

Réponse de M. Langevin. — En ce qui concerne le ^{7}Be les énergies des couches K et L sont suffisamment faibles pour interdire dans l'état actuel de la technique du comptage proportionnel une mesure du rapport $\frac{\text{capture } L}{\text{capture } K}$ par cette méthode.

Intervention de M. Burhop. — La meilleure valeur du rendement de fluorescence K : π_k, pour $Z = 35$, obtenue en appliquant la méthode des moindres carrés aux résultats de 84 mesures représentées par une fonction de la forme

$$\left(\frac{\pi}{1-\pi}\right)^{\frac{1}{4}} = B(Z-\sigma) + CZ^3,$$

où B, σ, C sont des constantes, est $\pi_k = 0{,}60 \pm 0{,}02$, 0,02 étant l'erreur statistique moyenne sur les résultats. Cette valeur de π_k conduit à

$$\frac{\lambda_L}{\lambda_K} = 0{,}176 \pm 0{,}05.$$

Réponse de M. Radvanyi aux observations présentées après la Communication de M. Langevin par M. Burhop. — On ne peut pas exclure complètement dans le cas de ^{79}Kr une explication de l'écart observé par une valeur trop faible du rendement de fluorescence K, R_K. Mais d'une part les déterminations les plus récentes de R_K pour les Z moyens indiquent des valeurs plus petites. D'autre part des mesures de $\frac{\lambda_L}{\lambda_K}$ sur d'autres radioéléments semblent confirmer l'hypothèse d'un écart systématique. Ainsi l'écart pour Kr ne pourrait être expliqué que partiellement par une valeur différente pour R_K.

BIBLIOGRAPHIE.

[1] PONTECORVO, KIRKWOOD et HANNA. — *Phys. Rev.*, 1949, **75**, 932.

[2] LANGEVIN M. et RADVANYI P. — *C. R. Acad. Sc.*, 1954, **238**, 77 et 232.

[3] RADVANYI P. — *C. R. Acad. Sc.*, 1952, **235**, 428.

[4] BERGSTRÖM I. — *Arkiv för Physik*, 1952, **5**, n° **14**, 191.

[5] COCKROFT et CURRAN. — *Rev. Sc. Instr.* U. S. A., 1951, **22**, 37.

[6] TOWNSEND. — *Thèse*, Université Washington Saint-Louis, juin 1951.

[7] MAGEE, BELL et JORDAN. — *Rev. Sc. Instr.*, 1952, **234**, 30.

[8] LANGEVIN, ALLARD et CORBÉ. — *J. Physique Rad.*, 1953, **14**, 691.

[9] RADVANYI P. — *J. Physique Rad.* (C. R. Colloque).

[10] RADVANYI P. — *Thèse*, juin 1954 (à paraître).

[11] DER MATEOSIAN E. — *Phys. Rev.*, 1953, **92**, 938.

COEFFICIENTS DE CONVERSION DE LA COUCHE L (*) I.

Par M. E. ROSE,
Oak Ridge National Laboratory, Oak Ridge, Tennessee.

Summary. — A discussion of the role of internal conversion in nuclear spectroscopy and a brief description of the underlying assumptions and the method of calculation of conversion coefficients is given. Preliminary conclusions based on results so far obtained are presented.

1. **Introduction.** — L'un des principaux objectifs de la physique nucléaire, en l'état actuel de son développement, est la détermination de schémas de désintégration et l'assignation aux niveaux de nombres quantiques (moment angulaire et parité). C'est un fait bien connu que l'un des outils les plus puissants dans cette recherche, est la comparaison des coefficients de conversion interne observés et calculés.

Dans la grande majorité des transitions entre des niveaux nucléaires d'excitation au-dessous des énergies de liaison des particules, le mode des excitations est presque entièrement réduit à une compétition entre l'émission d'électrons orbitaux et des rayons γ. Le rapport d'embranchement pour ces deux processus est le coefficient de conversion

$$\alpha = \frac{\mathrm{Ne}}{\mathrm{Nq}}.$$

L'importance du processus de conversion réside dans le fait que α est une fonction très sensible des paramètres dont il dépend.

Ceux-ci sont :

1° La multipolarité L de la radiation émise, qui donne le changement de moment angulaire dans la transition nucléaire;

2° Le changement de parité qui se manifeste par le comportement différent de α pour des multiples électrique et magnétique;

3° l'énergie émise k;

4° le nombre atomique Z de l'émetteur;

5° la couche ou la sous-couche d'où l'émission se produit.

L'information nucléaire que l'on obtient est contenue dans les articles 1° et 2°. Sous ce rapport, on note que la radiation n'est pas toujours pure et peut consister en un mélange de deux valeurs de L,

$$L_{\min} = |J_f - J_i| \qquad \text{et} \qquad L_{\min} + 1,$$

où J_f et J_i sont les moments angulaires des niveaux nucléaires.

On présume que les deux paramètres k et Z sont connus de l'expérimentateur, mais le fait que α dépende étroitement de ceux-ci est justifié parce que :

a. il est impossible de calculer les coefficients α pour tous les Z et tous les k;

b. une certaine incertitude expérimentale s'attache à la mesure de k.

Sous ce rapport on peut observer que les coefficients sont des fonctions de k décroissant de façon rapide et monotone et plus l'ordre du multipôle est élevé, plus rapide est la décroissance. Par conséquent, une erreur donnée Δk représente une plus grande source d'incertitude dans α pour des valeurs grandes de L que pour des valeurs petites. La source d'incertitude est aussi plus grande pour k faible que pour k élevé. Cependant le fait qu'une précision moindre est nécessaire dans la région de plus grande sensibilité en vue de l'identification de la multipolarité, apporte une compensation du moins partielle. Ces remarques sont illustrées par les valeurs du coefficient de conversion dans la sous-couche L_{II} pour $Z = 85$ par exemple. Le tableau I donne ces résultats. Ici k est mesuré en $Mc^2 = 511$ keV.

TABLEAU I.

Coefficient de conversion $Z = 85$, L_{II}.

	Électrique.		Magnétique.	
L.. k...	0,05.	1,5.	0,05.	1,5.
1.......	$9{,}78 \cdot 10^{1}$	$5{,}71 \cdot 10^{-5}$	$1{,}07 \cdot 10^{1}$	$7{,}77 \cdot 10^{-4}$
2.......	$2{,}02 \cdot 10^{3}$	$7{,}64 \cdot 10^{-4}$	$4{,}07 \cdot 10^{2}$	$2{,}40 \cdot 10^{-3}$
3.......	$1{,}84 \cdot 10^{5}$	$4{,}38 \cdot 10^{-3}$	$7{,}55 \cdot 10^{3}$	$7{,}15 \cdot 10^{-3}$
4.......	$9{,}19 \cdot 10^{6}$	$1{,}71 \cdot 10^{-2}$	$9{,}48 \cdot 10^{5}$	$2{,}00 \cdot 10^{-2}$

Puisque l'on peut maintenant effectuer des mesures d'énergie avec une précision considérable, une limitation plus sérieuse sur les résultats expérimentaux à basse énergie peut survenir du fait des mesures d'intensité. De toute façon il est presque toujours plus facile de mesurer des rapports d'intensités

(*) Cette Note est basée sur un travail exécuté par l'auteur avec G. H. Gœrtzel, de l'Université de New-York et C. J Swift, du « National Bureau of Standard », Washington, D. C.

d'électrons que des coefficients de conversion absolus qui impliquent une mesure d'intensité de rayon γ. Puisque le premier rapport, pour deux sous-couches L_i et L_j est :

$$\frac{\mathrm{Ne}(L_i)}{\mathrm{Ne}(L_j)} = \frac{\alpha(L_i)}{\alpha(L_j)}$$

où l'indice des coefficients α désigne la sous-couche, il est important d'avoir à sa disposition les valeurs numériques des coefficients de conversion pour les sous-couches L aussi bien que la couche K.

La résolution des sous-couches L sera possible pour toutes les valeurs de Z excepté les faibles. Dans ces cas les rapports $\frac{K}{L}$ suffiront généralement à l'identification de la radiation.

2. Recherches précédentes. Hypothèse. — On dispose depuis quelque temps d'évaluations précises des coefficients de la couche K [1]. Ces résultats ont montré que rien si ce n'est un traitement entièrement relativiste de la dynamique de l'électron ne pouvait conduire à des résultats concluants. Ils ont également montré qu'il était essentiel de traiter le champ coulombien agissant sur l'électron avec exactitude. Le screening n'était pas compris dans le travail mentionné, mais quelques valeurs calculées avec screening pour la couche K par Reitz [2] ont montré que cette négligence était justifiée. Pour la couche L les seuls résultats disponibles jusqu'ici étaient ceux de Gellman et al. [3] qui ont calculé α pour des transitions E_1, E_2 et M_1, pour trois valeurs de l'énergie et pour trois valeurs de Z. Ces calculs ont également été faits sans correction de screening.

La présente étude qui comprend les effets de screening montre qu'en ce qui concerne du moins les cas considérés par Gellman et ses coéquipiers, le fait de négliger le screening n'est pas grave. Outre les résultats cités, les autres calculs qui ont paru dans la littérature utilisent des approximations (dynamique non relativiste) conduisant à des résultats qui n'ont, on peut le voir maintenant, qu'une signification qualitative grossière, et dans un certain nombre de cas donnent naissance à des erreurs très importantes.

Les hypothèses sur lesquelles la présente étude est fondée sont exactement celles de Reitz, et diffèrent de l'étude de Gellman seulement en ce qu'elles tiennent compte du screening.

Le noyau est considéré comme un point et, par conséquent, les coefficients de conversion sont complètement indépendants de la structure nucléaire. Que cette hypothèse soit valable, cela ne semble pas nécessiter de discussion.

Une autre hypothèse qu'il faut certainement faire conduit à négliger l'environnement chimique. Sans cette hypothèse, le problème n'a plus de limite. Le mécanisme par lequel les effets chimiques se manifestent est indépendant de la nécessité de normaliser la fonction d'onde dans le continu.

Ceci implique le calcul de cette fonction d'onde à des distances qui peuvent être considérablement plus grandes que le rayon de l'orbite. Cependant l'effet est très petit et même pour la conversion dans des couches ayant un rayon supérieur à celui de la couche L, il s'élève à une fraction de pourcent [4].

On peut également soulever la question de savoir si un processus de conversion, faisant suite à une capture K (ou une autre conversion), ne sera pas affecté par le fait qu'il peut manquer un électron sur la couche K.

En réalité il est facile de voir que les transitions Auger et X vont remplir le vide de la couche K (ou de la couche L) longtemps avant que la transition nucléaire puisse se produire. Ceci est vrai même pour les transitions nucléaires les plus rapides. Même si, par suite de transitions Auger, la conversion se produit dans la couche L avec un vide ou plus dans les couches de valence, ceci n'affectera que la fonction de screening et d'une façon relativement minime. Puisque le screening n'est lui-même qu'une correction d'environ 10 pour 100, l'occurence de vide dans les couches extérieures modifierait les coefficients de conversion de beaucoup moins que 1 pour 100.

De plus, il est seulement nécessaire d'ajouter pour être complet que l'on utilise la théorie classique de perturbation dans la mesure où il s'agit du couplage des particules chargées avec le champ de radiations [5]. Ceci est en accord avec le résultat bien connu, à savoir qu'un tel procédé donne une description des processus d'électrodynamique quantique concordant avec l'expérience.

3. Portée et méthode des calculs. — En plus des sous-couches L_{I}, L_{II} et L_{III} nous avons également entrepris de donner les coefficients de conversion pour la couche K. Premièrement ceci est fait pour étendre les résultats de la référence [1] aux énergies plus basses. Deuxièmement, il est presque aussi facile de répéter les calculs de la couche K (pour les mêmes valeurs de k et Z que celles de la couche L) que d'interpoler les résultats antérieurs. Les cas considérés sont

$Z = 15, 25, 35, 45, 55, 65, 75, 85, 95$;

$k = 0{,}05, 0{,}10, 0{,}20, 0{,}40, 0{,}60, 0{,}80, 1{,}0, 1{,}5, 2{,}0$;

$L = 1, 2, 3, 4, 5$, électrique et magnétique;

K, L_{I}, L_{II}, L_{III}.

En tout ceci représente 3 500 coefficients de conversion (en omettant des cas pour la couche K où la conservation de l'énergie fait défaut). Au moment où nous écrivons on a achevé l'étude de ce qui suit : 290 valeurs pour la couche K, 450 valeurs pour la couche L_1 et 130 valeurs de la couche L_{II}.

On a surtout fait porter l'effort sur $Z = 25$, 55 et 85 afin d'obtenir une vue d'ensemble préliminaire de l'orientation des coefficients de conversion et d'obtenir quelques conclusions initiales.

Il est clair que les coefficients de conversion dépendent des éléments de matrice radiale qui contiennent les fonctions radiales de l'état initial, de l'état final et du champ de radiation, où évidemment la dernière est une fonction sphérique de Hankel. La première tâche est l'évaluation de celles-ci et l'étude du programme adopté peut être divisé en quatre étapes :

a. Les fonctions d'onde de l'état initial (lié). Ici les équations radiales de Dirac (pour des potentiels à champ central) sont intégrées avec un potentiel de Thomas-Fermi-Dirac [6]. Le principal problème réside dans la détermination d'une valeur propre précise pour l'énergie appropriée au potentiel choisi. On y parvient par un procédé itératif lorsque l'on n'a besoin pour le départ que de valeurs propres d'essai approximatives.

b. On obtient les fonctions d'onde de l'état final en intégrant les mêmes équations radiales mais en faisant une petite modification dans le screening pour traduire le fait que l'électron dans le contenu est sous l'influence d'un « trou partiel » dans l'état initial. Le point le plus délicat est la normalisation qui nécessite l'intégration à de longues distances. Ses fonctions d'onde du continu doivent être calculées avec un *réseau très fin*; ceci implique que les fonctions de l'état lié, malgré leur variation plus lente,doivent être déterminées sur le même réseau. Pour les fonctions des états final et initial, on prend les précautions convenables en vue du comportement singulier à l'origine lorsque le moment angulaire de l'électron est $\frac{1}{2}\hbar$.

c. On obtient les fonctions de Hankel en utilisant les formules de récurence. La seule difficulté est le fait que pour la partie réelle (fonctions de Bessel) d'importantes annulations se produisent pour des distances radiales faibles et il faut une grande précision pour obtenir les fonctions d'ordre plus élevé.

d. Les quadratures des éléments de matrices sont menés à bien par des procédés classiques. Il est nécessaire pour des raisons techniques (et en vue du comportement des différentes fonctions d'onde) de diviser le domaine d'intégration en trois parties qu'il faut additionner. Bien que cette partie du travail soit comparativement simple, le temps qu'on y passe (machine) est considérable.

Beaucoup des résultats sont vérifiés par des opérations séparées et indépendantes. Les résultats sont comparés avec les précédents partout où cela est possible et l'on vérifie les erreurs accidentelles en les portant en fonction de k, Z et L.

4. **Conclusions préliminaires.** — Bien qu'un quart environ du programme soit achevé pour le moment, certains résultats intéressants apparaissent :

a. Les rapports $\frac{K}{L}$ ne sont pas toujours suffisamment sensibles pour définir une certaine propriété et de telles mesures devraient être complétées par des rapports pour les sous-couches L partout où cela est possible.

b. Le rapport $\frac{L_I}{L_{II}}$ pour les émetteurs lourds ($Z = 85$, en particulier) est virtuellement indépendant de l'énergie pour la radiation M_1 et a une valeur $\approx 11{,}0$. Pour la radiation $M_I(L > 1)$, le rapport $\frac{L_I}{L_{II}}$ est une fonction décroissante de k et varie depuis 3 ($L = 5$) à 8 ($L = 2$) pour $k = 1{,}5$ jusqu'à des valeurs de l'ordre de 20 à 35 pour k faible (0,05). Pour $k \sim 0{,}07$, la discrimination entre les multipoles magnétiques est faible et il faudrait utiliser d'autres rapports $\left(\frac{L_I}{L_{III}} \text{ par exemple}\right)$. Dans tous les cas L_I se convertit plus fortement que L_{II} pour une radiation magnétique.

c. Pour $Z = 85$ dans le rapport $\frac{L_I}{L_{II}}$ les multipôles électriques favorisent la sous-couche L_{II}, d'avantage que ne le font les multipôles magnétiques.

Ceci est spécialement vrai pour $L = 2 — 5$ aux énergies basses et intermédiaires. Pour les hautes énergies, les sous-couches L_I et L_{II} se convertissent avec une probabilité sensiblement égale. La radiation E_1 se convertit à peu près de la même façon dans les deux sous-couches à toutes les énergies bien qu'aux hautes énergies, la couche L_I est favorisée d'un facteur 10.

d. Le rapport $\frac{K}{L_I}$ porté comme une fonction de $\frac{Z^2}{k}$ est plus grand pour un Z bas que pour un Z élevé. Pour des transitions M_1 le rapport $\frac{K}{L_I}$ pour $Z = 55$ est en bon accord avec les résultats empiriques et ceci indique la conversion d'une façon prédominante dans la sous-couche L_I pour ce cas.

Intervention de M. Verster. — Il y a quelque temps, nous avons mesuré $L_I : L_{II} : L_{III}$, rapport de transition de 35 keV pour ^{195}Au (produit de désintégration de ^{195}Hg, ce qui donna un rapport 100 : 10 :1. En utilisant les données de Gellman et al., nous pouvons déduire le rapport $\frac{E_2}{M_1}$ de ces résultats. L'interférence entre les deux processus de conversion a-t-elle une influence ?

Réponse de M. Rose. — Les coefficients de conversion pour les mélanges sont toujours un mélange incohérent de ceux des multipoles purs.

Intervention de M. Sliv. — Si l'on tient compte, dans le calcul des coefficients de conversion interne des dimensions finies du noyau, dans une série de cas les résultats sont affectés de façon notable. Nous avons effectué le calcul des coefficients de conversion pour les électrons K et L_{I} pour des transitions M_1 et M_2 en supposant que la charge est uniformément répartie dans le noyau, mais que le « courant de transition » « bouge » dans le noyau.

Les valeurs relatives de la correction pour le coefficient de conversion interne sur la couche K, en fonction de Z sont portées dans le tableau suivant :

Z.	$\frac{\beta_K^{(1)}(\text{corrigé})}{\beta_K^{(1)}(\text{Rose})}$.
49	0,95
83	0,65
92	0,50

Le rapport $\frac{\beta_K^{(1)}(\text{corrigé})}{\beta_K^{(1)}(\text{Rose})}$ reste constant dans le domaine d'énergie de $h\nu$ comprise entre 0,3 à 2,5 mc^2.

Les résultats sont analogues pour les coefficients de conversion interne L_{I}.

Il convient de noter qu'une répartition de charge dans le noyau et « un courant de transition » différents n'influent pas sensiblement sur le résultat.

La correction pour les coefficients de conversion pour des transitions M_2 est approximativement deux fois plus petite.

BIBLIOGRAPHIE.

[1] Rose M. E., Gœrtzel G. H., Spinrad B. I., Harr J. et Strong P. — *Phys. Rev.*, 1951, **83**, 79.

[2] Reitz J. — *Phys. Rev.*, 1950, **77**, 10.

[3] Gellman H., Griffith B. A. et Stanley J. P. — *Phys. Rev.*, 1952, **85**, 944.

[4] Bainbridge K. T., Goldhaber M. et Wilson E. — *Phys. Rev.*, 1951, **84**, 1260.

[5] Tralli N. et Gœrtzel G. H. — *Phys. Rev.*, 1951, **83**, 399.

[6] Umeda K. — *J. Fac. Sc. Hokkaidô Imp. Univ.*, II, 1942, **3**, 171.

[7] La machine utilisée est le « Standards Eastern Automatic Computer » (SEAC) au « Bureau of Standards ».

LA CONVERSION INTERNE : COMPARAISON DE QUELQUES RÉSULTATS EXPÉRIMENTAUX ET THÉORIQUES

Par J. TEILLAC,

Laboratoire Curie, Institut du Radium.

Summary. — The coefficients of internal conversion can be calculated as a function of the energy of transition, of the nature and polarity of γ radiation and of the characteristics of the ejected electron. On the other hand the coefficients of conversion or their relative value in different levels can be measured experimentally.

The comparison of the experimental results with these of calculations recently developed allows the solution of a certain number of problems concerning the transitions between nuclear levels and the interaction between nucleus and electrons.

La conversion interne est une des manifestations essentielles de l'interaction entre le noyau et le cortège électronique. Il est maintenant bien connu qu'un noyau dans un état excité peut perdre son énergie d'excitation en la cédant *directement* à un électron atomique, celui-ci quittant l'atome avec une énergie égale à l'énergie d'excitation du noyau diminuée de l'énergie de liaison correspondant à la couche à laquelle il appartient. On sait par ailleurs que la probabilité par unité de temps Pe de ce phénomène est proportionnelle au carré de l'élément de matrice nucléaire de transition de telle sorte que le rapport $\alpha = \frac{Pe}{P\gamma}$ appelé coefficient de conversion interne en est indépendant ($P\gamma$ étant la probabilité par unité de temps pour l'émission de photon). Le rapport α ne dépend donc que de l'énergie de la transition, de la nature et de la polarité du rayonnement ainsi que des diverses caractéristiques de l'électron éjecté. Ainsi ce rapport peut faire l'objet de calculs exacts et être comparé aux valeurs expérimentales. Ces calculs sont très complexes; de nombreux travaux y ont été consacrés [1], [2], [3], [4], certains d'entre eux [2] font intervenir des hypothèses simplificatrices qui ne les rendent utilisables que dans des domaines très restreints. Récemment, M. E. Rose et ses collaborateurs [3] ont entrepris à l'aide de machines à calculer électroniques des calculs exacts pour la couche K et la couche L [1].

L'étude du phénomène de conversion interne est actuellement surtout utilisée pour la détermination de l'énergie, la nature et la polarité des transitions entre niveaux nucléaires. Nous ne parlerons pas de la détermination précise de l'énergie, notre but étant plutôt de montrer quelques-uns des résultats qu'on a pu obtenir grâce au développement des calculs des coefficients de conversion, principalement dans la couche L.

(1) Nous remercions vivement le professeur M. E. Rose de bien vouloir nous communiquer les résultats de ses calculs avant publication.

1. **La conversion K et L.** — Expérimentalement on sépare aisément les électrons extraits des couches K et L au moins pour les atomes dont le nombre atomique n'est pas trop faible (la conversion interne étant en général prépondérante dans ces deux couches). Théoriquement la mesure du coefficient de conversion interne dans la couche K (lorsque l'énergie de la transition est suffisante) permet de connaître la nature et la polarité du rayonnement.

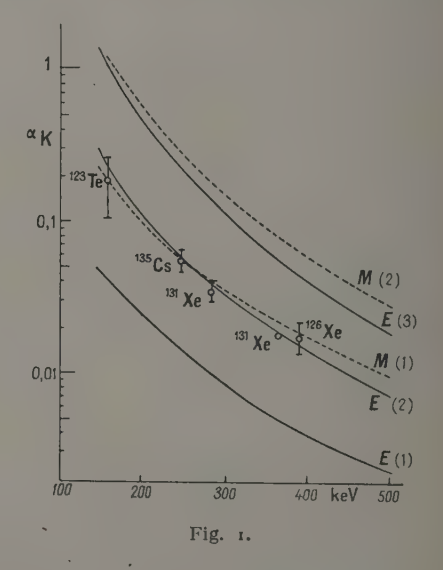


Fig. 1.

En fait il existe des cas où deux rayonnements peuvent être permis par les règles de sélection et présenter des coefficients de conversion trop voisins pour être distingués expérimentalement. Sur la figure 1 nous avons reporté les coefficients de

conversion calculés par Rose et ses collaborateurs pour $Z = 54$; on peut constater que pour une énergie de l'ordre de 250 keV il n'est pas possible de déterminer s'il s'agit d'un rayonnement $M(1)$ ou $E(2)$ ou, *a fortiori*, d'un mélange $M(1) + E(2)$. Par ailleurs, comme l'a signalé M. M. Frilley [5], la connaissance des rayonnements X dus au réarrangement de la couche K n'apporte aucun renseignement supplémentaire même lorsqu'il s'agit d'une transition unique comme c'est le cas pour la couche L.

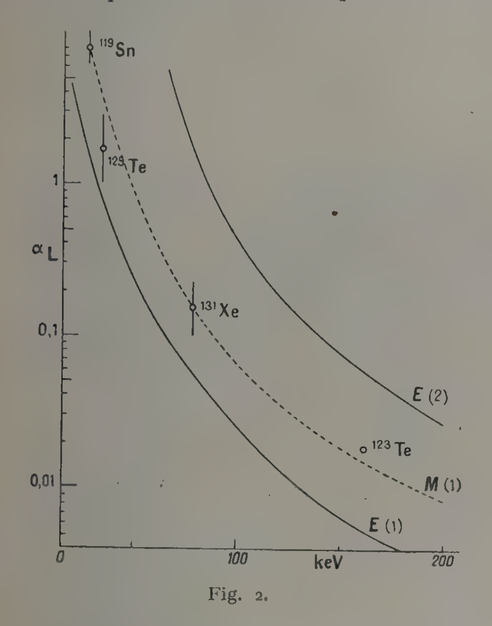


Fig. 2.

Il est donc nécessaire d'obtenir d'autres précisions en étudiant par exemple la conversion dans la couche L. Sur la figure 2 nous avons reporté les coefficients de conversion calculés par Gellman et al. pour $Z = 49$ et ceux obtenus par Rose pour $Z = 55$ et pour un rayonnement $M(1)$, en supposant que la conversion dans la couche L_{III} est négligeable. Il est clair que la détermination précise de α_L lève l'ambiguïté laissée par la mesure de α_K.

La mesure précise des coefficients de conversion est souvent délicate puisqu'elle fait intervenir la mesure absolue du nombre d'électrons de conversion extraits d'une couche déterminée et du nombre de photons. On a quelquefois avantage à rechercher la valeur du rapport $\frac{\alpha_K}{\alpha_L}$ qui ne fait intervenir que les mesures relatives du nombre d'électrons de conversion extraits des couches K et L. Cependant, actuellement, les valeurs théoriques de ce rapport ne sont connues que dans un très petit nombre de cas et les déterminations expérimentales, quoique plus simples en principe, font intervenir des corrections importantes dues à la différence d'énergie des électrons. Sur la figure 3 nous avons tracé les rapports $\frac{K}{L}$ pour des rayonnements $M(1)$, $E(1)$ et $E(2)$, pour $Z = 85$ d'après les calculs de Rose et reporté quelques points expérimentaux.

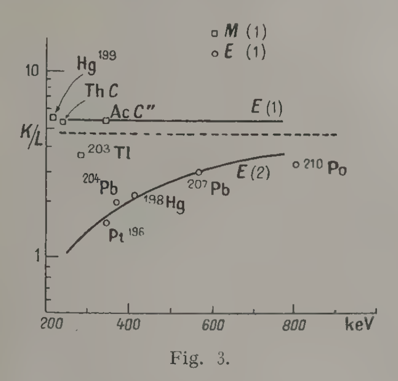


Fig. 3.

2. **La conversion dans les sous-niveaux de la couche** *L*. — Ainsi, pour les noyaux dont Z est moyen ou élevé, et lorsque l'énergie de la transition est suffisante, la connaissance du coefficient de conversion α_K et du rapport $\frac{\alpha_K}{\alpha_L}$, permet de trouver les variations de spin et le changement de parité intervenant dans les transitions entre niveaux excités.

Cependant, la conversion dans la couche L prend de plus en plus d'importance lorsque Z croît. Ceci est dû d'abord au fait que l'énergie de liaison des électrons est plus importante et aussi parce que souvent l'énergie des transitions entre niveaux excités du noyau est plus faible. Il est même fréquent, dans les noyaux lourds, que l'énergie de la transition soit inférieure à l'énergie de liaison de la couche K et que seule la conversion dans les couches moins liées puisse avoir lieu. La détermination du coefficient de conversion α_L est alors essentielle.

Mais parallèlement, la différence d'énergie de liaison entre les sous-niveaux L_I, L_{II}, L_{III} augmentant avec Z, il devient possible avec un bon spectrographe de séparer la conversion dans les trois sous-couches. Dans ces conditions il est beaucoup plus commode de mesurer les rapports $\frac{\alpha_{L_I}}{\alpha_{L_{II}}}$, $\frac{\alpha_{L_I}}{\alpha_{L_{III}}}$, ou $\frac{\alpha_{L_{II}}}{\alpha_{L_{III}}}$ que les coefficients partiels α_{L_I}, $\alpha_{L_{II}}$, $\alpha_{L_{III}}$ ou le coefficient total $\alpha_{L_{III}}$. En effet, à l'avantage d'effectuer des mesures relatives s'ajoute celui d'effectuer des mesures sur des électrons ayant pratiquement la même énergie si bien que les corrections relatives deviennent très faibles; on peut par exemple opérer avec un spectrographe semi-circulaire et employer comme détecteur la plaque photographique; la

variation du noircissement en fonction de l'énergie des électrons sera négligeable, alors qu'elle serait importante s'il s'agissait d'électrons extraits des couches K et L.

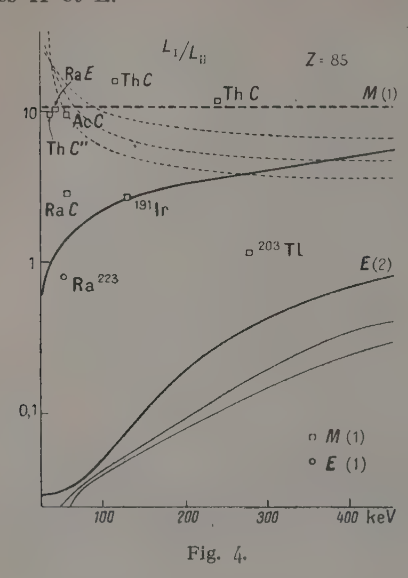


Fig. 4.

On possède quelques calculs sur les intensités relatives dans les sous-niveaux [12] mais seulement dans un nombre restreint de cas les calculs précis

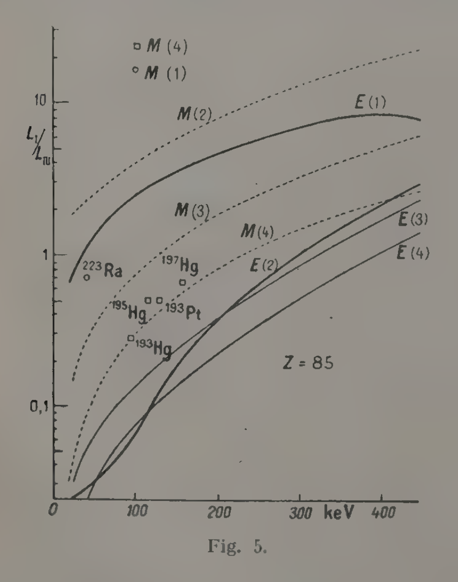


Fig. 5.

ont été effectués [3], [4]. Ces résultats montrent cependant que la conversion relative dans les sous-couches L_I, L_{II}, L_{III} est sensible à la nature et la polarité des rayonnements. Mihelich [6] l'avait d'ailleurs constaté empiriquement.

Les figures 4, 5 et 6 représentent les rapports $\frac{\alpha_{L_I}}{\alpha_{L_{II}}}$, $\frac{\alpha_{L_I}}{\alpha_{L_{III}}}$ et $\frac{\alpha_{L_{II}}}{\alpha_{L_{III}}}$ pour quelques rayonnements électriques et magnétiques et pour $Z = 84$ ou 85 tels qu'on peut les déduire des calculs Rose [3] ou Gellman et al. [4].

Fig. 6.

Étant donné la précision nécessairement limitée de la mesure de ces rapports, mesures qui peuvent être entachées d'erreurs assez considérables lorsque ces rapports sont > 10 ou $< 0,1$, on ne doit pas penser obtenir, *dans tous les cas*, d'après la mesure de ces rapports, une détermination exacte de la nature et de la polarité du rayonnement. Mais il est souvent possible d'obtenir, pour chaque cas particulier, d'autres renseignements tels que : coefficient de conversion total dans la couche L, vie moyenne de l'état excité, etc.

Les courbes des figures 4, 5 et 6 ont été tracées pour des énergies inférieures à 500 keV. L'observation et la séparation des raies de conversion L_I, L_{II}, L_{III} étant difficile pour des énergies plus élevées.

En se bornant au domaine compris entre 25 et 200 keV environ on peut déduire de ces courbes quelques règles simples permettant de reconnaître aisément la nature et la polarité d'un rayonnement d'après le simple examen des raies de conversion dans les sous-niveaux L. Nous limiterons ces observations aux rayonnements $E(1)$, $E(2)$ et $M(1)$ qui sont vraisemblablement les plus fréquents.

1° L'observation d'une raie L_I plus intense ou

du même ordre de grandeur que les raies L_{II} et L_{III} est l'indice d'un $M(1)$ ou d'un $E(1)$:

— il s'agit d'un $M(1)$ si $\frac{L_I}{L_{II}} \simeq 11$ et L_{III} est très faible;

— il s'agit d'un $E(1)$ si $0,7 \leq \frac{L_I}{L_{II}} \leq 3$ et si $0,6 \leq \frac{L_I}{L_{III}} \leq 5$.

2° La non-observation de la raie L_I ou plus exactement un rapport $\frac{L_I}{L_{II}} \leq 0,2$ indique un rayonnement $E(2)$ comme le confirme un rapport $0,9 \leq \frac{L}{L_{III}}$ 2.

Ces remarques ne sont naturellement valables qu'autant qu'on a affaire à des rayonnements purs. En particulier, on sait qu'un certain nombre de mélanges $M(1) + E(2)$ ont été observés [les deux rayonnements $M(1)$ et $E(2)$ ayant des règles de sélection assez semblables]. Il existe d'autre part des raisons théoriques [7] de penser que de tels mélanges doivent aussi apparaître dans les noyaux lourds, en particulier entre les niveaux de rotation. Le mélange $M(1) + E(2)$, si les proportions sont favorables, se comportera du point de vue conversion relative dans les sous-niveaux L comme un $E(1)$, mais le coefficient de conversion total dans la couche L sera très différent.

Les courbes des figures 5 à 7 ont été tracées d'après les calculs de M, E. Rose et al. [3] et ne sont strictement valables que pour $Z = 85$. Cependant, comme on peut le voir d'après les résultats publiés par Gellman, Griffith et Stanley [4], la variation avec Z des rapports figurés est assez faible et en admettant des variations de plus ou moins 20 pour 100 on peut penser qu'ils sont valables entre $Z \sim 76$ et $Z \sim 94$.

3. Résultats expérimentaux. — La publication des calculs théoriques des coefficients de conversion dans les différents sous-niveaux de la couche L a tout de suite permis de résoudre un certain nombre de problèmes posés par l'interprétation des raies de conversion. Nous citerons principalement deux exemples, l'un relatif aux raies de conversion du RTh [8], l'autre relatif aux raies de conversion de faible énergie du RAc [9]. L'interprétation correcte de ces raies de conversion n'est d'ailleurs pas uniquement due à la comparaison des intensités relatives des raies L_I, L_{II} et L_{III} mais aussi à la détermination précise de leur énergie.

a. Raies de conversion du RTh. — Les premières études sur les électrons de conversion du RTh ont mis en évidence quatre raies [10]. Mais les mesures plus exactes de S. Rosenblum, M. Valadarès et M. Guillot [8] ont permis de conclure que deux de ces raies étaient en réalité des doublets :

TABLEAU I.

Raies de conversion observées au cours de la transmutation RTh → ThX (d'après [8]).

Raies.	$H\rho$.	E (keV).	Intensités.	Énergie de la couche (keV) ($Z = 88$).	Énergie du γ (keV).
A.....	893,3	65,91	100	18,48 (L_{II})	84,39
B.....	915,1	68,96	84	15,44 (L_{III})	84,40
C.....	989,8	79,89	29	4,49 (M_{II})	84,38
C₁....	994,8	80,64	23	3,79 (M_{III})	84,43
D.....	1 013,5	83,49	13	0,96 ($M_{II,III}$)	84,45
D₁....	1 018,5	84,26	2	0,14 (O_{III})	84,40

L'étude de la structure fine α ayant montré l'existence d'un niveau nucléaire vers 84 keV avait conduit les premiers auteurs à interpréter les raies A et C d'une part et B et D d'autre part comme étant dues à la conversion dans les couches L_I et M_I de deux rayonnements γ d'énergie 84 et 87 keV respectivement. Il était admis en effet à cette époque que la conversion dans les sous-couches L_I et M_I était prépondérante; par ailleurs la précision des mesures n'était pas suffisante pour constater que la différence d'énergie entre les raies A et C et B et D n'était pas identique.

Les calculs de Gellman et al. [4] ont permis à S. Rosenblum et al. [8] d'interpréter le spectre d'électrons observés comme étant dû à un *seul rayonnement* $E(2)$ (tableau I). Des résultats analogues ont été obtenus pour la transmutation Io → Ra comme le montre le tableau II.

TABLEAU II (d'après [8]).

Raies.	$H\rho$.	E (keV).	Intensités.	Énergie de la couche (keV) ($Z = 88$).	Énergie du γ (keV).
A.......	766,4	49,27	100	18,48 (L_{II})	67,75
B.......	790,6	52,28	95	15,44 (L_{III})	67,72
C.......	874,1	63,26	50 (C + C₁)	4,49 (M_I)	67,75
C₁......	879,4	63,99		3,79 (M_{III})	67,78
D.......	899,6	66,78	25 (D + D₁)	0,96 ($N_{II,III}$)	67,74
D₁......	905,8	67,75		0,14 (O_{III})	67,79

b. Raies de conversion de faible énergie du RAc. — Le spectre des raies de conversion lié à la transmutation RAc → AcX est beaucoup plus complexe. Le tableau III est extrait du travail de M. Frilley, S. Rosenblum, M. Valadarès et G. Bouissières [9].

On est en présence dans ce domaine d'énergie d'au moins cinq rayonnements γ d'énergie 29,97, 31,64, 50,16, 61,63 et 68,67 keV. La précision excellente des mesures d'énergie permet de conclure que les rayonnements de 29,97 et 31,64 keV sont en cascade tandis que la transition de 61,63 keV représente la transition directe.

TABLEAU III.

N°.	$H\rho$.	E (keV).	Interprétation ($Z = 88$).	Énergie du γ.	Intensité.
1	351,6	10,77	19,23 (L_I)	30,00	tf
2	362,4	11,43	18,48 (L_{II})	29,91	m
3	377,7	12,41	(L_I)	31,64	tf
4	389,0	13,15	(L_{II})	31,63	f
5	408,7	14,48	15,44 (L_{III})	29,92	F
6	432,7	16,21	(L_{III})	31,65	m
7	543,8	25,40	4,66 ($M_{I,II}$)	30,06	F
8	551,8	26,13	3,79 (M_{III})	29,92	F
9	560,6	26,95	($M_{I,II}$)	31,61	m
10	570,2	27,86	(M_{III})	31,65	m
11	580,9	28,88	1,13 ($N_{I,II}$)	30,01	F
12	589,8	29,75	0,20 (O_{II})	29,95	m
13	601,4	30,96	(L_I)	50,13	F
14	609,6	31,72	(L_{II})	50,20	F
15	620,6	32,85	–	–	m
16	638,6	34,72	(L_{III})	50,16	F
17	660	37,0	–	–	tf
18	683	39,5	–	–	tf
19	714,4	43,10	(L_{II})	61,58	tF
20	740,2	46,14	(L_{III})	61,58	tF
21	747,7	47,04	–	–	f
22	767,4	49,43	(L_I)	68,66	F
23	774,7	50,34	(L_{II})	68,62	m
24	798,1	53,28	(L_{III})	68,72	m
25	826,8	56,99	($M_{I,II}$)	61,65	F
26	833,4	57,85	(M_{III})	61,64	F
27	853,5	60,53	($N_{I,II}$)	61,66	F
28	860,5	61,47	(O_{II})	61,67	f

L'intérêt d'être guidé par des considérations théoriques sur l'intensité relative de la conversion interne dans les sous-niveaux pour classer ces raies est évident. Les auteurs ont ainsi pu montrer que les rayonnements de 29,97, 31,64 et 61,63 keV étaient des $E(2)$ alors que le rayonnement de 50,16 keV est un $E(1)$ comme le confirment des considérations sur le coefficient de conversion total dans la couche L [9].

Les valeurs des rapports $\frac{L_I}{L_{II}}$, $\frac{L_I}{L_{III}}$ et $\frac{L_{II}}{L_{III}}$ ont été reportées sur les figures 4, 5 et 6. On peut constater que la valeur $\frac{L_{II}}{L_{III}} = 0,9$ pour le rayonnement γ de 61,63 keV est en bon accord avec les calculs de M. E. Rose alors que les γ de 29,97 et 31,64 keV ont un rapport $\frac{L_{II}}{L_{III}}$ trop faible.

L'interprétation de la conversion du γ de 68,67 keV se heurte par contre à des difficultés : la valeur des rapports $\frac{L_I}{L_{II}}$, $\frac{L_{II}}{L_{III}}$ est l'indice d'un $E(1)$; comme, par ailleurs, les raies de conversion ont une intensité comparable à celle du γ de 50,16 keV, M. Frilley aurait dû observer les photons par diffraction cristalline [11]. Il est possible que ce rayonnement de 60,67 keV soit un mélange $M(1) + E(2)$, les raies de conversion d'un tel mélange, comme nous l'avons signalé plus haut, peuvent présenter l'aspect d'un $E(1)$. Une estimation du coefficient de conversion total dans la couche L permettra de confirmer ce point de vue.

c. Comparaison de l'ensemble des résultats expérimentaux avec les calculs théoriques pour les rayonnements électriques $E(l)$. — Dans un certain nombre de cas on connaît la nature et la polarité des rayonnements émis. Les premiers niveaux excités des noyaux pairs-pairs se désexcitent par émission d'un $E(2)$ (sauf O^{16} et ^{208}Pb); le tableau IV résume l'ensemble des résultats expérimentaux pour ces rayonnements :

TABLEAU IV.

Noyau.	E (keV).	Intensité relative pour L_I.	L_{II}.	L_{III}.	$\frac{L_{II}}{L_{III}}$.	Valeurs théoriques.
^{238}Pu	43	–	71	37	1,92	1,02
^{226}Ra	68	–	100	95	1,05	1,2
^{224}Ra	84	–	100	84	1,19	1,25
^{222}Rn	188	–	6	4	1,5	1,75
^{198}Hg	411	–	2,5	1	2,5	2,7
^{186}Os	137	–	1,24	1	1,24	1,5
^{176}Hf	89	–	0,71	1	0,71	1,25
^{170}Yb	84,8	$< 0,1$	0,83	1	0,83	1,25
^{166}Er	80,7	$< 0,1$	0,72	1	0,72	1,20

L'accord de ces résultats avec les calculs est assez satisfaisant compte tenu de la précision des mesures.

Par contre le tableau V montre que la seule observation des raies de conversion L_I, L_{II}, L_{III} ne permet pas de distinguer la polarité d'un rayonnement électrique; [les rayonnements classés $E(3)$ l'ont été en général d'après des mesures de période]. On voit en effet (*fig.* 4) que pour tous les rayonnements électriques [sauf les $E(1)$] la raie de conversion L_I est pratiquement inobservable pour les énergies inférieures à 200 keV, or, comme l'indique la figure 6, les rapports $\frac{L_{II}}{L_{III}}$ sont très voisins pour ces rayonnements.

d. Résultats expérimentaux pour les rayonnements magnétiques (tableau VI). — Comme nous l'avons dit, l'observation d'un rapport $\frac{L_I}{L_{II}} > 4$ pour une énergie de transition — 200 keV est caractéristique d'un rayonnement magnétique. Contrairement aux rayonnements électriques il est possible de leur assigner une polarité d'après l'étude du rapport $\frac{L_I}{L_{III}}$ comme le montre la figure 5. A l'exception de $M(1)$ ce rapport est compris en général entre 0,1 et 10 et peut être déterminé assez facilement. L'accord entre les résultats expérimentaux et les calculs théoriques est satisfaisant.

Quoique pour les rayonnements $M(1)$ on ait seulement quelques résultats sûrs, il semble cepen-

TABLEAU V.

Noyau.	E (keV).	Intensité relative pour L_I.	L_{II}.	L_{III}.	$\frac{L_{II}}{L_{III}}$.	Classement.	Valeur théorique.
^{181}Ta	133	0,20	1,22	1,00	1,22	$E(2)$	1,5
^{189}Hg	158	–	1,6	1,00	1,6	$E(2)$	1,6
^{197}Hg	134	0,04	1,1	1	1,1	$E(2)$	1,5
^{191}Ir	42	–	0,8	1	0,8	$E(2)$	1,02
^{223}Ra	29,97	–	1	3	0,33	$E(2)$	0,95
^{223}Ra	31,64	–	1	3	0,33	$E(2)$	0,95
^{223}Ra	61,33	–	9	10	0,9	$E(2)$	1,1
^{206}Pb	516	–	10	~ 1,8	~5,5	$E(3)$	5,5
^{197}Au	130	$<0,4$	10,4	4,2	2,4	$E(3)$	3,2
^{193}Au	32	–	0,67	1	0,67	$E(3)$	2,1
^{195}Au	57	–	1,1	1	1,1	$E(3)$	2,4
^{165}Dy	108	–	1,5	1	0,66	$E(3)$	2,6

TABLEAU VI.

Noyau.	E (keV).	Intensité relative pour L_I.	L_{II}.	L_{III}.	Classement.	$\frac{L_I}{L_{II}}$.	$\frac{L_I}{L_{III}}$.	$\frac{L_I}{L_{III}}$ théorique.
ThC	238	10,6	0,94	0,18	$M(1)$	11,3	59	>100
RaE	47	100	7,5	0,7	$M(1)$	13	140	>100
ThC''	40	3,0	0,3	0,05	$M(1)$	10	60	>100
^{197}Au	77	1,0	0,45	0,34	$M(1)+E(2)$	2,2	2,9	–
^{203}Tl	279	2,85	2,08	1,00	$M(1)+E(2)$	1,4	2,85	–
^{191}Ir	128	4,9	1,75	1,00	$M(1)+E(2)$	2,8	4,9	–
^{191}Os	74,2	0,42	0,25	1,00	$M(3)$	1,7	0,42	0,48
^{197}Hg	165	1	$<0,1$	1,5	$M(4)$	>10	0,67	0,56
^{193}Pt	136	1,23	–	2,41	$M(4)$	grand	0,5	0,43
^{195}Hg	122	1	–	2	$M(4)$	»	0,5	0,38
^{193}Hg	101	1	–	3,5	$M(4)$	»	0,28	0,18

dant que la conversion dans la couche L_{III} soit plus élevée que ne l'indiquent les calculs de Gellman et al.; la comparaison entre les résultats expérimentaux et les calculs s'effectue plus aisément à l'aide du rapport $\frac{L_{II}}{L_{III}}$ (*fig.* 6). On trouve en effet pour les rayonnements de 47 keV du RaD et de 238 keV du ThB, qui sont les cas les mieux connus des rapports $\frac{L_{II}}{L_{III}}$ respectivement égaux à 11 et 5 alors qu'on s'attendait à des rapports égaux à 75 et 30.

Dans les noyaux lourds, lorsqu'il est possible de séparer les raies de conversion dans les sous-niveaux L_I, L_{II}, L_{III}, l'étude de l'intensité relative de la conversion dans ces sous-niveaux permet d'assigner sans ambiguïté la nature et la polarité pour des rayonnements magnétiques, ou dipolaire électrique. Par contre, à l'aide de ces seules données, il semble qu'il soit très difficile de distinguer des rayonnements $E(2)$, $E(3)$ ou $E(4)$.

4. **Conclusions.** — La conversion interne offre, pour les noyaux de Z moyens et lourds, un procédé commode pour déterminer la nature et la polarité des transitions entre niveaux excités de faible énergie. En général la mesure du coefficient de conversion dans la couche K est suffisante. Cependant, pour les Z moyens il peut être nécessaire de mesurer simultanément α_L. La mesure de α_K ou α_L pouvant d'ailleurs être remplacée quelquefois par celle du rapport $\frac{\alpha_K}{\alpha_L}$.

Intervention de M. Deutsch. — Est-ce qu'on est sûr qu'il n'y a pas une contribution faible E_2 dans les transitions M_1 pour lesquelles on a trouvé trop de L_{III} ? Même une contribution trop faible pour changer le rapport $\frac{K}{L}$ pourrait changer le rapport $\frac{L_{III}}{L_I}$ d'une façon importante.

Intervention de M. Mladjenović après l'intervention de M. Deutsch : Les transitions γ dans Ra*B-C*. — Je voudrais brièvement exposer les résultats d'un travail fait par le Professeur Slätis

et moi-même [13] sur les transitions γ principales dans Ra*B*-*C*. Nous avons mesuré les rapports $\frac{K}{L}$, les rapports $L_{I} : L_{II} : L_{III}$ et les coefficients de conversion interne.

Les rapports $L_{I} : L_{II} : L_{III}$ ainsi que les rapports théoriques pour les transitions E_1, E_2 et M_1 sont donnés dans le tableau suivant :

(keV).	E_1.	E_2.	M_1.	Expérimental.
53,2	1 : 0,74 : 0,94	1 : 30 : 30	1 : 0,085 : 0,0012	1 : 0,19 : 0,01
241,9	1 : 0,26 : 0,2	1 : 4 : 21	1 : 0,081 : 0,0025	1 : 0,22 : <0,01
295,2	1 : 0,24 : 0,18	1 : 2,5 : 1,2	1 : 0,081 : 0,0026	1 : 0,16 : <0,01
352	1 : 0,22 : 0,16	1 : 1,5 : 0,6	1 : 0,08 : 0,003	1 : 0,18 : <0,01

On voit immédiatement qu'il ne s'agit pas de transitions E_1 à cause du rapport $\frac{L_I}{L_{II}}$. D'autre part les transitions E_1 ont un rapport $\frac{L_I}{L_{III}}$ bien plus faible que ceux trouvés expérimentalement. Le plus vraisemblable paraît la transition M_1 avec un peu de E_2 parce que les rapports $\frac{L_I}{L_{II}}$ et $\frac{L_I}{L_{III}}$ trouvés expérimentalement sont un peu plus faibles que ceux donnés par la théorie.

D'autre part le rapport $\frac{K}{L}$ est égal à environ 5, ce qui est en accord avec la théorie qui donne 5,8 pour les M_1 transitions et pour $Z = 85$.

Finalement nous avons comparé nos intensités des raies de conversion avec les intensités de raies gamma mesurées par Muller et al. [2]. Dans le tableau suivant nous comparons les valeurs obtenues en divisant nos valeurs d'intensités par les coefficients de conversion, avec les valeurs de Muller.

Énergies (keV).	Intensité relative donnée par la conversion. E_1.	E_2.	M_1.	Muller.
241,9	0,32	0,31	0,28	0,2
295,2	0,64	0,63	0,6	0,55
352	1	1	1	1

Bien que les différences ne soient pas très grandes on voit que c'est M_1 qui donne les meilleurs résultats.

On voit donc que les résultats théoriques permettent de déterminer la nature de la transition sans ambiguïté.

BIBLIOGRAPHIE.

[1] Hulme H. R., Mott N. F., Taylor H. M. et Oppenheimer F. — *Proc. Roy. Soc.*, 1936, **155**, 315.
Fisk J. B. — *Proc. Roy. Soc.*, 1934, **143**, 684.
[2] Hebb M. H. et Nelson E. — *Phys. Rev.*, 1940, **58**, 486.
[3] Rose M. E. et al. — *Phys. Rev.*, 1951, **83**, 79 et communication privée.
[4] Gellman H., Griffith B. A. et Stanley J. P. — *Phys. Rev.*, 1952, **85**, 944.
[5] Frilley M. — Communication au Colloque.
[6] Mihelich J. W. — *Phys. Rev.*, 1952, **87**, 646.
[7] Bohr A. et Mottelson B. R. —
[8] Rosenblum S., Valadarés M. et Guillot M. — *J. Physique Rad.*, 1954, **15**, 129.
[9] Frilley M., Rosenblum S., Valadarés M. et Bouissières G. — *J. Physique Rad.*, 1954, **15**, 45.
[10] Meitner L. — *Z. Physik*, 1928, **52**, 632.
Surugue J. et Tsien S. T. — *C. R. Acad. Sc.*, 1941, **213**, 172.
[11] Frilley M. — *J. Physique Rad.*, 1940, **1**, 34.
[12] Tralli N. et Lowen I. S. — *Phys. Rev.*, 1949, **76**, 1541.
Church E. L. et Monahan J. E. —
[13] Mladjenović et Slatis. — *Arkiv för Fysik*, 1954, **8**, n° 5.
[14] Muller, Hayt, Klein et du Mond. — *Phys. Rev.*, 1954, **88**, 775.

MÉLANGE DE TRANSITIONS M_1 ET E_2

Par Mmes N. MARTY et H. LANGEVIN,
Physique et Chimie nucléaires, Collège de France.

Summary. — We attempt to see if the experimental evidence of mixed M_1-E_2 γ transitions, not explained theoretically by the one particle model, can be related with the existence of rotational levels. Two tables are given of the mixed M_1-E_2 radiations for odd A and even-even nuclei, with, in the first case, the coulombian excitation levels when they are known.

Les transitions entre niveaux excités des noyaux ont lieu par émission de rayonnements γ caractérisés par leur nature, électrique ou magnétique, leur ordre de polarité et leur parité.

Les théories de l'émission γ basées sur le modèle individuel prévoient des probabilités de transition du même ordre de grandeur pour des rayonnements de même ordre de polarité, les rayonnements magnétiques étant cependant moins probables que les rayonnements électriques; les probabilités d'émission décroissent très rapidement quand l'ordre de polarité augmente. On ne devrait donc pas trouver de mélanges de rayonnements, en particulier les probabilités théoriques d'émission de dipôles magnétiques et de quadrupôles électriques diffèrent d'un facteur environ 10^4. En fait, on a mis en évidence expérimentalement des mélanges de rayonnements M_1-E_2 dans lesquels la proportion de E_2 dépasse quelques pour-cent. On peut chercher à expliquer ce résultat soit par une interdiction partielle de certaines transitions M_1, soit au contraire par une probabilité plus grande d'émission de certains E_2.

Une telle interdiction partielle de M_1 était prévue théoriquement ; en effet, avec un potentiel central simple, les transitions qui ont lieu entre couches pour lesquelles le moment orbital l diffère de 2 (par exemple $d_{\frac{3}{2}} s_{\frac{1}{2}}$) sont totalement interdites. L'intervention d'un terme dû au couplage spin-orbite tel que l'ont indiqué Jensen et Mayer [2] ou le choix du potentiel d'échange utilisé par Sachs et Ross [3] rendent possible l'existence de transitions M_1 ($\Delta l = 2$). Ces transitions ont été mises effectivement en évidence expérimentalement dans un très grand nombre de cas.

Mihelich et de Shalit [4] ont cherché à relier l'existence de mélanges M_1-E_2 à cette interdiction partielle des transitions M_1 ($\Delta l = 2$). En fait, dans le tableau qu'ils donnent, il y a plus de transitions M_1 pures correspondant à un changement de moment orbital 2 que de transitions sans changement de moment orbital. Pour les cinq cas qu'ils considèrent comme mélanges, 1 correspond à $\Delta l = 0$ et 4 à $\Delta l = 2$. Rien ne semble donc indiquer une interdiction nette des transitions $\Delta l = 2$ par rapport aux transitions $\Delta l = 0$. Dans l'étude des périodes non plus, il ne semble pas y avoir de différence essentielle entre les deux, les transitions M_1 ayant toutes des périodes environ 100 fois plus grandes que celles prévues théoriquement [5].

Il faut signaler que Mihelich indique un plus grand nombre de transitions M_1 pures correspondant à un nombre de neutrons impair, alors que les cinq transitions dites mélange correspondent à un nombre de protons impair.

Nous avions pensé qu'une autre explication du mélange pouvait être trouvée dans le fait que certaines transitions E_2 entre niveaux de rotation sont, comme la montré A. Bohr [6] particulièrement favorisées.

Nous avons cherché à déterminer de façon certaine la nature des rayonnements M_1 purs ou non, en nous attachant particulièrement à ceux signalés comme mélange M_1-E_2. Pour cela, nous avons utilisé les valeurs expérimentales données pour : 1° les coefficients de conversion $K(\alpha_K)$; 2° les rapports des intensités des raies d'électrons de conversion dans les couches K et $L\left(\frac{K}{L}\right)$; 3° les rapports des intensités des raies dues aux conversions dans les sous-couches L_I, L_{II}, L_{III} ($L_I : L_{II} : L_{III}$) que nous avons comparés aux valeurs théoriques des coefficients de conversion K, L_I, L_{II}, L_{III} calculées par Rose et coll., ainsi qu'à celles calculées par Gellman, Griffith et Stanley [7], dans le cas des sous-couches L_I, L_{II}, L_{III} et confirmées expérimentalement par Mihelich [8]; 4° des mesures de corrélations angulaires γ-γ.

Les valeurs des coefficients de conversion, qui supposent la connaissance des schémas de désintégrations, n'étaient pas en général assez précises et concordantes pour permettre de conclure, particulièrement dans le domaine des terres rares où les

coefficients de conversion pour les E_2 et les M_1 sont en général très voisins; les valeurs de $\frac{K}{L}$ et surtout de $L_I : L_{II} : L_{III}$ nous ont été plus utiles, ces dernières, dans le cas de noyaux lourds et de rayons γ peu énergiques, peuvent permettre de conclure à un mélange lorsque les raies L_I, L_{II}, L_{III}; ont des intensités comparables. Enfin, les corrélations angulaires γ-γ sont sensibles à des proportions très faibles d'une des composantes dans le mélange de transitions.

Par contre, l'analyse des résultats expérimentaux ne nous a permis de conclure à l'existence de M_1 purs pour aucun rayonnement émis à partir d'un niveau de rotation.

Les transitions correspondant aux noyaux de A impair pour lesquelles il existe un nombre suffisant de données permettant de conclure à l'existence de mélanges comportant plus de quelques pour-cent de E_2 sont groupées dans le tableau I. Pour la plupart d'entre elles, des niveaux de rotation mis en évidence par excitation coulombienne sont connus dans le même noyau [9]. Elles se placent toutes dans le domaine de Z de 63 à 81, où existent aussi les niveaux de rotation. Huit autres cas : $^{149}_{61}$Pm, $^{151}_{61}$Pm, $^{151}_{62}$Sm, $^{145}_{63}$Eu, $^{155}_{63}$Eu, $^{165}_{67}$Ho, $^{187}_{75}$Re, $^{207}_{81}$Tl pour lesquelles les données expérimentales ne permettent pas de conclure, se placent aussi dans ce domaine. Enfin, il faut remarquer que la majorité des cas correspond à des noyaux à nombre de protons impair.

TABLEAU I.

Mélanges $M_1 + E_2$. Noyaux de A impair.

			Méthodes.					Excitation coulombienne		
									Niveaux d'énergie	
Isotope	I_0 (**).	E_γ (keV).	α_K.	$\frac{K}{L}$.	$L_I : L_{II} : L_{III}$.	Correlations	Conclusion.	E_γ (keV).	expérimentaux.	théoriques.
$^{153}_{63}$Eu	$\frac{5}{2}$	103	?(*)	+ (*)	?	–	Mélange ou M_1	84-110-194	84-194	84-192
		70	–	+	+	–	»			
		84	–	+	–	–	»			
$^{181}_{73}$Ta	$\frac{7}{2}$	135	?	–	–	+	»	137-167-303	137-303	137-304
		345	–	+	–	+	»			
		480	?	?	–	?	» ou E_2			
$^{191}_{77}$Ir	$\frac{3}{2}$	129	+	+	+	–	»	133-219-360	133-360	133-320
$^{195}_{78}$Pt	$\frac{1}{2}$	96	?	+	+	–	»	29-98-128	29-128	–
		129	?	?	–	–	» ?			
$^{193}_{79}$Au	–	37,9	–	–	+	–	»	–	–	–
		258	–	?	–	–	» ?			
$^{195}_{79}$Au	–	61,2	–	–	+	–	»	–	–	–
$^{197}_{79}$Au	$\frac{3}{2}$	77	–	–	+	–	»	77-190-277-545	–	–
		191	–	?	–	–	–			
		279	–	?	–	–	–			
$^{205}_{81}$Tl	$\frac{1}{2}$	279	+	+	+	+	»	220 ?	–	–
		400	+	+	–	+	»			

(*) Les + correspondent à une indication sûre. Les ? correspondent à une indication possible.
(**) I_0, spin de l'état fondamental.

Le tableau II montre quatre exemples pour lesquels les données expérimentales permettent de conclure à des transitions M_1 pures (proportion de $E_2 \leq 1$ pour 100). Elles se placent dans une région où le modèle individuel s'applique particulièrement bien : domaine d'isomérie où ces transitions M_1 sont en cascade avec des transitions M_4 émises entre les niveaux $h_{\frac{11}{2}}$ et $d_{\frac{3}{2}}$.

Nous avons rassemblé dans le tableau III toutes les transitions que l'on peut considérer comme mélanges M_1-E_2 dans les noyaux pair-pair; on retrouve tous les noyaux cités par G. Scharff-

TABLEAU II.

Transitions M_1 pures

			Methodes.			
Isotope	Caractère des niveaux.	E_γ (keV).	α_K.	$\frac{K}{L}$.	$L_I : L_{II} : L_{III}$.	Correlations
$^{117}_{50}$Sn	$d_{\frac{3}{2}} s_{\frac{1}{2}}$	162	–	–	–	$1,5.10^{-3} E_2$
$^{119}_{50}$Sn	$d_{\frac{3}{2}} s_{\frac{1}{2}}$	24	–	–	+	–
$^{123}_{52}$Te	$d_{\frac{3}{2}} s_{\frac{1}{2}}$	159	+	?	+	$10^{-2} E_2$
[illegible]Te	$d_{\frac{3}{2}} s_{\frac{1}{2}}$	35,5	?	?	–	9 [illegible] $10^{-3} E_2$

Goldhaber [10] comme ayant un spin 2 pour les premier et deuxième niveaux excités, à l'exclusion de $^{186}_{76}$Os pour lequel nous n'avons pas trouvé de données expérimentales précises.

TABLEAU III.

Mélange $M1 + E2$. Noyaux pair-pair.

Z A N.	Spin des niveaux.	E_γ (keV).	Proportion de M1 méthode des corrélations	Conclusion.
$^{76}_{34}$Se...	2-2	650	20 à 66 pour 100 $M1$	Mélange
$^{88}_{38}$Sr...	2-2 ou 3-2	910	?	?
$^{114}_{48}$Cd...	2-2	718	97 »	»
$^{122}_{52}$Te...	2-2	680	80 »	»
$^{124}_{52}$Te...	3?-2	730	90 »	»
$^{194}_{78}$Pt...	2-2	1 480	2 »	»
$^{196}_{78}$Pt...	2-2	330	5 »	»
$^{198}_{80}$Hg..	2-2	676,5	40 » ; α_k, $\frac{K}{L}$	»
$^{208}_{82}$Pb...	5-5	511	15 pour 100 $M1$	»

Les résultats expérimentaux ne sont pas actuellement suffisants pour permettre de conclure à un lien certain entre les mélanges de transition $M1$ et $E2$ et l'existence de niveaux de rotation dans le noyau correspondant : ils demandent à être complétés, en particulier dans les directions suivantes : recherche des niveaux de rotation dans les cas où l'existence du mélange est probable, attribution de la nature des rayonnements dans le domaine des noyaux plus légers que les terres rares où des données expérimentales précises sont souvent plus difficiles à obtenir.

Intervention de M. Frilley. — Pour plusieurs rayonnements classés comme $M(1)$ cités par Riou (*J. Physique Rad.*, 1952, **13**, 593) on trouve L_{III} théorique beaucoup plus petit que L_{III} expérimental. Un mélange $M1$-$E2$ pourrait expliquer cette anomalie.

BIBLIOGRAPHIE.

[1] BLATT-WEISSKOPF. — *Theoretical Nuclear Phys.*, 1952, p. 623.

[2] JENSEN J. H. D. et MAYER M. G. — *Phys. Rev.*, 1952, **85**, 1040.

[3] SACHS R. G. et ROSS M. — *Phys. Rev.*, 1951, **84**, 379.

[4] MIHELICH J. W. et SHALIT A. DE. — *Phys. Rev.*, 1954, **93**, 135.

[5] GRAHAM R. L. et BELL R. E. — *Can. J. Phys.*, 1953, **31**, 377.

[6] BOHR A. — Rotational States of Atomic nuclei, p. 35, Copenhague, Ejnar Munksgaards Forlag, 1954.

[7] GELLMAN H., GRIFFITH B. A. et STANLEY J. P. — *Phys. Rev.*, 1950, **80**, 866.

[8] MIHELICH J. W. — *Phys. Rev.*, 1952, **87**, 646.

[9] BOHR A. et MOTTELSON B. R. — Communication privée du chapitre 17 de β *and* γ *ray spectroscopy* (édité par K. Siegbahn).

[10] SCHARFF-GOLDHABER G. — *Phys. Rev.*, 1953, **80**, 587.

LE JOURNAL DE PHYSIQUE ET LE RADIUM. TOME 16, JUILLET 1955, PAGE 534.

LES COEFFICIENTS DE CONVERSION INTERNE LORS DE TRANSITIONS ISOMÉRIQUES DE QUELQUES NOYAUX STABLES

Par I. ANTONOVA et U. ESTULIN,
Université de Moscou.

(Communication présentée par M. SKOBELTZYN.)

Summary. — Determination of Internal conversion coefficients for isomeric transitions of ^{87}Sr*, ^{113}In*, ^{115}In*, using absolute intensity countings measured thanks to two ionization chamber, one thimble shaped for the β, the other one slit shaped for the γ. Results in agreement with other experimental measurements but disagreeing with theoretical values.

Ma Communication qui est faite de la part de Mme Antonova et M. Estulin (de l'Université de Moscou) a pour but de signaler brièvement les résultats de leurs expériences qui ont permis d'effectuer par la méthode des mesures absolues l'évaluation du coefficient de conversion interne dans le cas de quelques transitions isomériques des noyaux stables, ou pratiquement stables (^{113}In*, ^{115}In* et ^{87}Sr*.).

Ces mesures sont basées sur les résultats d'une série de travaux effectués pendant plusieurs années sous la direction du Professeur I. M. Frank et publiés dans le *Journal de Physique expérimentale et théorique* (U. R. S. S., 1951-1953) et dans le *Bulletin de l'Académie des Sciences de l'U. R. S. S.* (série physique, 1954).

Il est à noter que dans son point de départ ces travaux ont été stimulés par des recherches (de Vernov et d'Oleg Vavilov) effectuées antérieurement et consacrées aux problèmes de rayons cosmiques. L'étude des effets dits « de transition » du rayonnement cosmique et l'analyse approfondie des relations purement énergétiques qui sont à la base de ces effets s'étaient montrées très utiles et fructueuses dans le domaine de radiation de haute énergie.

Ces études ont suggéré des recherches analogues dans le cas des rayons γ.

L'ancien problème était attaqué de nouveau en utilisant des moyens modernes.

Il s'agissait d'établir d'une manière sûre et précise la relation entre le flux du rayonnement γ et le courant d'ionisation produit par ce rayonnement dans une chambre d'ionisation construite d'après certains principes.

Il s'agit de la chambre d'ionisation en forme de fente avec un cadre en fil isolé servant d'électrode-collectrice entre les deux parois planes parallèles (20 × 20 cm) fixées à une distance de 10 mm l'une de l'autre.

On a exploré et analysé en détail (en utilisant une chambre à parois démontables) les diverses composantes de l'agent ionisant. En effectuant avec ces moyens (si l'on peut dire) un peu « d'anatomie », en ce qui concerne la répartition de l'effet d'ionisation, on pouvait discerner les composantes de cet effet et évaluer la contribution des deux parois avant et arrière ainsi que l'effet dû à leur « interaction » (qui se révèle en cas de grand Z du matériel des parois utilisées).

Il ressort de cette étude minutieuse que les chambres d'ionisation en forme de fente avec des parois faites de carbone peuvent servir à des mesures absolues de l'intensité des rayons γ, et sont pratiquement équivalentes aux petites chambres d'ionisation, les « dé-chambres » de L. H. Gray, basées sur le principe dont nous allons parler dans la suite et dont l'utilisation pour des mesures absolues a été solidement appuyée il y a longtemps.

L'avantage acquis en remplaçant la « dé-chambre » de Gray par la chambre en forme de fente dont il est question est évident, c'est l'augmentation du volume utilisé. Ce volume (celui de l'espace soumis à l'action d'ionisation) dans les expériences d'Estulin et coll. était de ~ 400 cm^3.

Au surplus il s'était montré possible d'utiliser pour le même but une chambre en parois de plomb. Même dans ce cas-là, s'il s'agit de radiation assez dure ($h\nu \geq \sim 500$ keV) il se montre possible d'évaluer par le calcul (quelque peu délicat pourtant cette fois) le courant d'ionisation produit par irradiation de l'intensité donnée.

De cette manière on a pu évaluer par calcul le rapport des efficacités des deux chambres en plomb d'une part et en parois de carbone d'autre part. D'un autre côté on a obtenu les valeurs de ce rapport

par mesures directes en utilisant un assortiment de sources de rayons γ monochromatiques de différents produits radioactifs artificiels.

La figure 1 montre les deux courbes (l'une, expérimentale, en pointillé et l'autre, continue, correspondant à des valeurs calculées). En ordonnées sont indiqués les rapports $\eta = \frac{S_{Pb}}{S_C}$, où S_{Pb} et S_C sont les efficacités dans le cas de Pb et de C réciproquement.

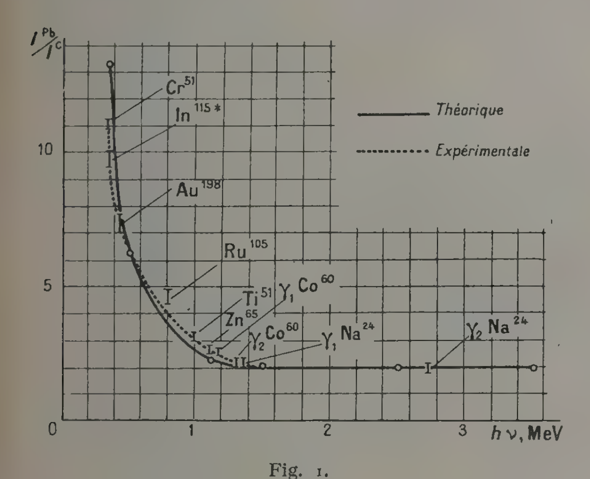


Fig. 1.

Au-dessous de $h\nu \sim 500$ keV, des écarts dans le sens, que l'on pouvait prévoir se révèlent (les valeurs expérimentales étant inférieures à celles calculées). Ces écarts veulent dire que dans les conditions indiquées la fente n'est pas suffisamment mince.

Cependant étant donné que la courbe expérimentale de l'étalonnage dont il était question plus haut est bien solidement établie, il est tout à fait possible d'effectuer des mesures absolues en utilisant la chambre d'ionisation à parois de plomb même dans la région d'un rayonnement relativement mou. Il en résulte qu'on peut obtenir les valeurs absolues avec des sources d'activité de centième de millicurie placées à une distance de 30 cm de l'appareil de mesure (le courant d'ionisation surpassant en tous les cas $> 10^{-13}$A).

C'est ainsi qu'on était en mesure d'évaluer l'intensité du rayonnement mocochromatique (de $h\nu$ bien connu) dans le cas des isomères indiqués au début de notre Communication.

Pour obtenir en même temps les valeurs absolues de l'énergie (et par conséquent) du nombre d'électrons émis par suite de la conversion interne, les produits actifs, les isomères (chimiquement purs dans les deux cas étudiés étaient introduits (en solution) dans les parois (faites d'un mélange contenant de la gélatine) d'une « dé-chambre » pour les rayons β de Gray.

Cette chambre contenant dans ses parois les produits actifs servait comme source de radiation γ dont l'intensité était mesurée simultanément par la « chambre γ » déjà décrite.

L'effet des rayons γ émis par la « chambre β » sur elle-même était presque négligeable (*fig.* 2).

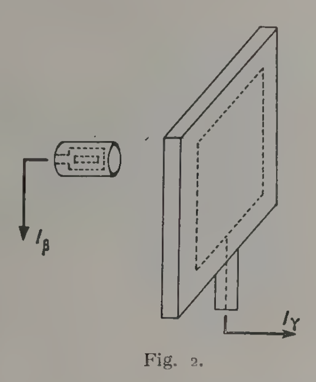


Fig. 2.

Nous rappelons ici le principe simple de ces mesures d'intensité absolue des rayons β. Le même principe est à la base des considérations et des calculs dont il était question dans notre exposé auparavant.

Il s'agit de deux postulats suivants dont la validité est tout à fait évidente.

1. En cas de radioactivité uniformément répartie dans un certain milieu homogène, l'énergie β émise par unité de volume est égale à l'énergie dissipée en même temps par ionisation dans le même milieu (par unité de volume).

2. Si l'on produit une cavité vide dans le milieu, cette cavité n'affecte pas le flux corpusculaire dans ce milieu de sorte que le flux est le même à l'intérieur de la cavité et dans le milieu l'entourant. Et, ensuite, si la cavité est remplie d'un gaz, le flux n'est pratiquement pas affecté non plus, à condition que les parcours moyens des électrons en question dans ce gaz soient grands par rapport aux dimensions de la cavité.

Alors, disposant d'une pareille cavité pour effectuer des mesures du courant d'ionisation on peut aisément évaluer l'énergie (des électrons de conversion interne dans notre cas) émise par unité de temps et provenant des sources d'activité donnée.

Il est nécessaire d'introduire quelques corrections en tenant compte de certains défauts de géométrie du dispositif expérimental et d'autres infractions aux prescriptions de schéma idéalisé. Ces corrections étant de différent sens et se compensant partiellement peuvent être évaluées. Dans les expériences envisagées elles ne dépassaient pas 2,5 pour 100.

Le dessin représente la chambre à rayons β (*fig.* 3).

Les dimensions de cette chambre miniature cylindrique sont les suivantes : le diamètre du cylindre est de 15 mm, la hauteur 20 mm et le volume de la cavité $\sim$ 0,8 cm³.

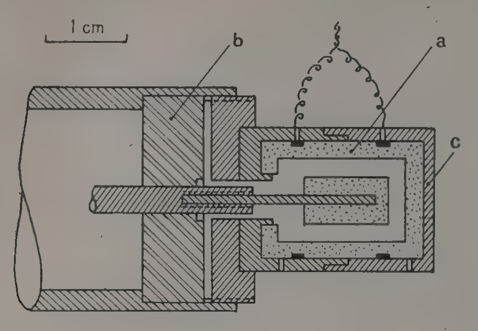


Fig. 3.

L'avantage essentiel est qu'il n'est pas question de l'activité spécifique des produits étudiés, sa valeur étant indifférente pour la réalisation du procédé décrit.

La valeur recherchée, c'est-à-dire le nombre N_β d'électrons de conversion interne peut être évaluée selon l'équation suivante :

$$\mathcal{J} = eN_\beta \mathcal{V} \frac{\eta_{e\,\text{gaz}}}{\eta_{e\,\text{par}}} \bar{\rho} \frac{\bar{E}_\beta}{\overline{W}_{\text{gaz}}} \frac{1}{B};$$

$\mathcal{J}$, le courant d'ionisation;

$\mathcal{V}$, le volume du gaz dans la chambre d'ionisation;

$\frac{\eta_{e\,\text{gaz}}}{\eta_{e\,\text{par}}}$, le rapport des concentrations d'électrons dans les deux milieux (gaz-paroi);

$\bar{\rho}$, le rapport correspondant des pouvoir ralentissant (gaz-paroi);

$\bar{E}_\beta$, l'énergie moyenne des électrons de conversion;

$\overline{W}_{\text{gaz}}$, l'énergie dissipée par une paire d'ions dans le gaz;

$\frac{1}{B}$, facteur contenant des corrections diverses.

$$B = \frac{1}{(1-r)(1+x)(1+y)(1-t)}.$$

Le facteur $\frac{1}{B}$ est à introduire si l'on tient compte de différentes sources d'erreurs systématiques : l'absorption d'électrons dans le gaz de la chambre d'ionisation (r), l'action du rayonnement X caractéristique et du rayonnement γ, l'influence de l'électrode centrale.

N_γ est calculé en utilisant les relations analogues. On obtient donc immédiatement

$$\alpha = \frac{N_\beta}{N_\gamma}.$$

Dans le cas de ^{113}In* et ^{115}In* les produits actifs étaient chimiquement purs.

Les résultats sont donnés dans le tableau ci-dessous. On peut les comparer dans le même tableau avec les données d'autres observateurs.

Tableau I.

Isomères.	Période T (h).	$h\nu$ émis.	Coefficient de conversion interne total α. Données des auteurs.	Données de la littérature.
^{113}In*	1,75	392	0,44±0,03	0,35±0,1 ; 0,55±0,03
^{115}In*	4,5	335	0,82±0,13	0,98 et 0,8
^{87}Sr*	2,8	388	0,28±0,03	0,28±0,06

L'erreur indiquée est l'erreur statistiques d'après les résultats d'une série de cinq mesures indépendantes.

Les données de ces mesures semblent préciser les valeurs du coefficient de conversion interne dans le cas de trois isomères étudiés.

La comparaison avec les calculs théoriques est montrée dans le tableau II.

Tableau II.

Isomères.	Données expérimentales. $\frac{\alpha_K}{\alpha_L+\alpha_M+\dots}$	α_K	Données théoriques. E_5	M_4
^{87}Sr*	6,65	0,24±0,03	0,256	0,164
^{113}In*	4,21	0,35	0,338	0,438
^{115}In*	3,76	0,65	0,72	0,96

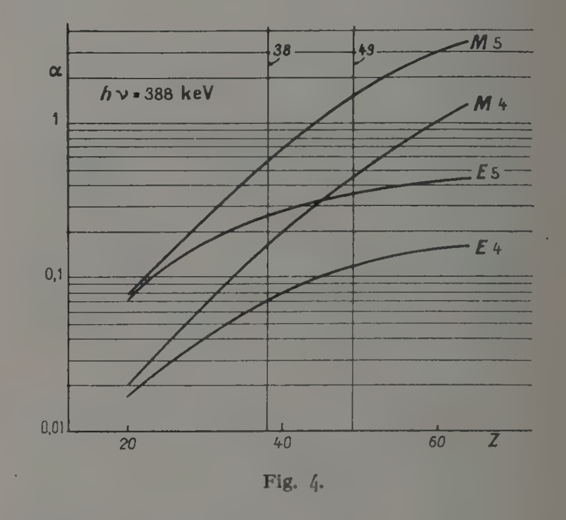


Fig. 4.

Les valeurs de la seconde colonne de ce tableau sont basées sur les mesures spectrométriques d'autres observateurs.

On a obtenu les valeurs des colonnes 4 et 5 en utilisant les courbes reproduites sur la figure 4.

C'est par un procédé d'interpolation qu'on a

tracé ces courbes d'après les données théoriques de M. Rose et de ses collaborateurs.

Les différentes données expérimentales s'accordent bien.

Mais s'il s'agit de comparer les résultats expérimentaux et théoriques on rencontre quelques divergences suffisamment prononcées (notamment dans le cas de $^{87}Sr^*$).

Les données expérimentales semblent être en faveur d'un mécanisme de 2^5-pôle « électrique » tandis qu'on accepte généralement l'hypothèse d'un multipôle 2^4-magnétique. (L'hypothèse de 2^5-multipôle électrique soulève quelques difficultés d'interprétation considérables.)

Il faut cependant, discuter s'il s'agit d'un désaccord bien réel. Mais c'est du côté des données théoriques qu'il faut poser cette question. C'est-à-dire qu'il faut voir si les valeurs théoriques (qui sont déduites selon les résultats des calculs insuffisamment détaillés) sont précises.

Nous avons fait cette Communication afin de signaler le résultat mentionné tout à l'heure et pour attirer l'attention sur la méthode utilisée et les travaux qui ont permis de l'élaborer.

Intervention de M. Haynes après la communication de M. Skobeltzyn. — Les deux mesures d'autres auteurs données par le Professeur Skobelzyn pour $^{113}In^*$ sont à nous, je crois. Nous croyons que la valeur 0,35 est inexacte et que la valeur 0,55 est plus exacte. Aussi on doit oublier la valeur 0,35.

Réponse de M. Skobeltzyn. — Il paraît, alors, que la valeur de 0,35 de la cinquième colonne du tableau I doit être supprimée. Dans ce cas-là il reste à comparer la valeur de 0,44 obtenue par les auteurs avec la valeur 0,55 donnée par M. Haynes.

Intervention de M. Deutsch. — Est-ce que la supposition d'un caractère E_5 pour ces transitions s'accorde encore avec le rapport $\frac{K}{L}$ mesuré ?

Intervention de M. H. Halban. — M. Halban demande quelle est la limite inférieure de α_K qu'on peut déterminer avec la méthode que M. Skobeltzyn vient de décrire.

Réponse de M. Skobeltzyn. — Il paraît que dans le cas de basses énergies (les isomères) la méthode reste généralement utilisable.

BIBLIOGRAPHIE.

[1] *J. Phys. exp. et théor. U. R. S. S.*, 1951, **21**, 1412.
[2] *Ibid.*, 1952, **22**, 414.
[3] *Ibid.*, 1953, **24**, 221.
[4] *Izv. Acad. Nauk U. R. S. S.* (série phys.), 1954, **18**, 79.
[5] Thomas D., Haynes S. et Broyles C. — *Phys. Rev.*, 1951, **82**, 961.
[6] Cook T. et Haynes S. — *Phys. Rev.*, 1952, **86**, 190.
[7] Langer L., Moffat R. et Graves G. — *Phys. Rev.*, 1952, **86**, 632.
[8] Manu L. et Axel P. — *Phys. Rev.*, 1950, **80**, 759 et 1951, **84**, 221.
[9] Graves G., Langer L. et Moffat. R. — *Phys. Rev.*, 1952, **88**, 344.
[10] Bendel W., Shore F., Brown H. et Becker R. — *Phys. Rev.*, 1952, **87**, 195.
[11] Rose M., Gœrtzel G., Spinard B., Harz J. et Strong P. — *Phys. Rev.*, 1951, **83**, 79.

RADIOACTIVITÉ NATURELLE DU LUTÉTIUM, DU RHÉNIUM ET DE L'OSMIUM

Par D. DIXON, A. Mc NAIR et S. C. CURRAN,
The Department of Natural Philosophy, The University, Glasgow W 2.

Summary. — Some studies of the decay of ^{176}Lu have been made by Dixon, Mc Nair and Curran with the help of the large proportional tube spectrometer and scintillation spectrometers. Sources down to 0.1 mg/cm² in thickness were spread over the large cathode and the shape of the β continuum, end-point 425 ± 25 keV, together with the internal conversion peaks observed. The conversion coefficients were evaluated. The γ ray spectrum and the γ-γ coincidence spectra showed that γ rays of energies 310, 190 and 89 keV were emitted in cascade. They arose in transitions from levels of spin and parity 6^+, 4^+ and 2^+. The decay scheme fitted accurately the Bohr-Mottelson predictions. The ground state of ^{176}Lu seemed to be a 10+state. The maximum branching by *K*-capture was 3 per 100. The half-life was 4.56×10^{10} g for ^{176}Lu.

Studies by Dixon and Glover on ^{184}Re and ^{184}Os failed to reveal β-activity or capture and minimum half-lives of 10^{16} years were deduced. Apparent evidence of capture in ^{184}Os was found to be due to a specific " background " effect and this effect could explain weak capture activities, for instance that tentatively assigned to ^{113}In.

Work on ^{22}Na by Moljk, with extremely thin sources in the proportional tube, is important in the general problem of observing very soft Auger electrons released in capture decay. The position spectrum was found to be closely allowed in shape down to 15 keV or less. The capture intensity, as examined by searching for Auger electrons, was not more than 3 per 100. These is still some uncertainty about the release of extremely soft electrons from such sources.

Experiments of Moljk and Curran on ^{14}C and ^{35}S as gaseous sources (CH_4 and CS_2) showed that both spectra were allowed in shape to better than 1 per 100 down to an energy of about 2 keV. New techniques for such examination were described.

Nous avons recherché la radioactivité de quelques radioéléments naturels à l'aide d'un compteur proportionnel de grandes dimensions, spécialement construit pour cette usage, dont on avait réduit le mouvement propre par un système de compteurs Geiger-Müller en anticoïncidences protégés par un environ 12 cm de plomb et 2,5 cm de fer. Le faible mouvement propre ainsi obtenu (16 c/mn) dans le compteur, dont la cathode avait une surface utile supérieure à 10^3 cm², nous a permis de poursuivre nos études sur les radioéléments naturels de longue période. Dans un article précédent [1], nous avons exposé en détail les avantages que procure l'emploi de sources placées à l'intérieur d'un compteur proportionnel ayant un faible mouvement propre.

La radioactivité du ^{176}Lu, un des trois isobares voisins, avait été établie d'une manière certaine, quoique jusqu'à une époque récente le schéma de désintégration précis était resté douteux [2], [4]. Goldhaber et Hill [5] proposent un schéma, dans lequel les γ d'énergie 270, 190 et 89 keV suivent en cascade la transition β d'énergie maximum 400 keV, et qui s'est trouvé en accord avec de récents résultats [6], [7]. Nous avons entrepris le présent travail sur le ^{111}Lu pour, d'une part obtenir les spectres β et γ, d'autre part établir le schéma de désintégration d'une étude détaillée des coïncidences γ—γ et enfin déterminer les intensités β et γ.

Pour étudier le spectre β du ^{176}Lu, nous avons utilisé deux sources; l'une de $LuCl_3$ de 0,49 mg/cm² d'épaisseur et l'autre de poudre de Lu_2O_3 finement pulvérisée de 0,149 mg/cm². Les spectres obtenus, en employant ces sources, montraient principalement une raie d'électrons vers 80 keV correspondant à la conversion *K* et *L* d'un γ de 89 keV, l'énergie maximum étant observée dans la région des 500 keV. Des raies électroniques plus faibles ont été observées avec les deux sources provenant de la conversion de γ de 310 ± 10 keV et 190 ± 10 keV. Le diagramme de Fermi du spectre continu est une droite entre 80 et 350 keV, ce qui est surprenant étant donné la complexité de la désintégration, dans laquelle une fraction des particules β ont leur énergie augmentée par l'émission simultanée de l'électron de conversion du γ de 89 keV qui est fortement converti. On a calculé le nombre total de désintégrations par heure dans la source à partir du coefficient de conversion du γ de 89 keV émis dans la transition isomérique de ^{176}Lu [8], [9] de 3,75 h de période et du taux de comptage; on en a déduit le rapport des intensités des deux composantes du spectre. En supposant une forme permise pour le spectre d'énergie maximum $E_{max} = 425$ keV, les points expérimentaux s'accordent avec le spectre ainsi déterminé. La forme du diagramme de Fermi est en accord avec une superposition de spectres d'énergie maximum 425 keV et une forme permise, et un spectre d'énergie maximum 425 + 80 keV. Nous en con-

cluons que le spectre β du ^{176}Lu a une forme permise d'énergie maximum 425 ± 15 keV et une période 4,56 ± 0,3.10^{10} ans. A partir de l'étude de l'intensité et de la nature du rayonnement L associé à la désintégration, on a pu estimer la probabilité de désintégration par capture électronique et trouver une vie moyenne partielle de 1,5.10^{12} an pour ce processus. Nous avons recherché le rayonnement γ à l'aide d'un compteur à scintillation à NaI de faible mouvement propre et observé des γ de 310 ± 10 keV et 190 ± 10 keV. Une raie à 53 keV correspond au rayonnement K du Lu provenant de l'absorption des γ dans la source dont l'épaisseur était de 0,4 mg/cm². Les coïncidences γ—γ confirment que ceux-ci sont en cascade comme l'avaient suggéré Goldhaber et Hill. De la comparaison entre les valeurs mesurées au compteur proportionnel des coefficients de conversion dans la couche K et les valeurs théoriques déduites des tables de Rose et al. [10] on conclut que ces rayonnements sont des E[2]. L'hypothèse d'un spin égal à 10 [11], [12] pour l'état fondamental du ^{176}Lu avec une parité paire signifie que la transition correspond à $\Delta J = 4$, non. Ceci semble plausible étant donné la grande valeur de $\log ft = 18{,}75$. Il apparaît improbable que la transition corresponde à $\Delta J = 3$, oui comme cela été trouvé pour ^{87}Rb ($\log ft = 18{,}6$), ce qui correspond à une forme de spectre interdite du troisième ordre [1], [13].

Rhénium et Osmium. — ^{187}Re et ^{187}Os sont des isobares voisins, de telle sorte que l'un doit être radioactif. Les premiers travaux, qui étaient erronés, suggéraient que ^{187}Os était radioactif par capture K et L [14], [15], mais les travaux de Naldrett et Libby [17] renversèrent la situation et indiquèrent que ^{187}Re était émetteur de période $\mathfrak{T} = 3.10^{10}$ ans. Les travaux ultérieurs de Sugerman [18] et Gauthé et Blum [19] confirment cette activité, mais Sugerman estime que la période est deux fois plus grande. Des recherches récentes entreprises à Glasgow semblent confirmer cette activité, mais avec une différence importante pour l'énergie maximum. Naldrett et Libby par des mesures d'absorption proposent 43 keV, tandis que nos premiers travaux suggéraient une énergie maximum vers 400 keV [20]. Depuis cette époque, nous avons considérablement réduit le mouvement propre, et avons trouvé que des rayonnements β que nous pensions être dus à ^{187}Re étaient en réalité dus à différentes contaminations radioactives de l'aluminium sur lequel était monté la source et qui était employé à l'intérieur du compteur proportionnel.

Les résultats de nos recherches plus complètes sur l'activité du rhénium indiquent une période pour ^{187}Re $< 10^{16}$ ans à moins que l'énergie du rayonnement β soit considérablement plus petite que 1 keV. Ce résultat négatif nous conduisit à examiner l'osmium et, à partir de différentes sources un rayonnement XL de la région du Re a été observé avec un taux de comptage de 0,5 c/mn pour 7,5 mg d'osmium répartis sur 900 cm². Nous avons étudié la possibilité suivant laquelle ce rayonnement L pourrait provenir de la conversion externe de γ traversant le compteur proportionnel et non détectés par le système d'anticoïncidences. Nous avons trouvé qu'en introduisant du tungstène et du platine dans le compteur, on détectait un rayonnement L de ces éléments en intensité comparable avec celui obtenu avec la source d'osmium. Des études semblables faites dans la région du rayonnement K en employant un compteur à scintillation à NaI entouré par du tungstène et de l'osmium ne montrait pas de rayonnement K du rhénium. On en conclut que la période de capture électronique de ^{187}Os est plus grande que 10^{15} ans.

Un rapport plus détaillé sur ce travail paraîtra par ailleurs.

Intervention de M. Deutsch. — 1. Étant donné le grand spin de ^{176}Lu, pensez-vous que le taux de capture K de 3 pour 100 que vous avez trouvé soit une limite supérieure ?

2. La valeur généralement admise pour la probabilité de capture K de ^{22}Na est d'environ 10 pour 100. Votre faible valeur, 2 pour 100 seulement, pourrait-elle être due à une absorption dans la source ?

3. Étant donné que le rayonnement γ postérieur à la décroissance de ^{22}Na est probablement E_2, votre valeur du coefficient de conversion de paires peut-il être affecté par des paires créées, en contrepartie, par les rayons γ de la source ?

Réponse de M. Curran. — 1. La probabilité de bifurcation de 3 pour 100 vers la capture K semble bien indiquée par la position et la forme du groupe L sur les courbes, mais il est vrai que nos données n'interdisent pas la possibilité d'une absence complète de capture K.

2. Pour ^{22}Na, la principale incertitude vient de ce que la meilleure source solide possible dans la région de 800 eV est en quantité mal connue. C'était probablement le cas de la source de Na Cl d'environ 1 μg/cm² déposé par évaporation sur un support de nylon de 10 μg/cm². Nous espérons travailler avec des sources de ^{37}A fixées par bombardement sur des films et vérifier leur comportement pour 2,5 et 0,25 keV environ.

Intervention de M. Rose. — Avez-vous calculé le rapport de bifurcation prévu pour une transition $\Delta J = 4$, « non » ?

Réponse de M. Curran. — Il n'est pas impossible que la paire de conversion interne des rayons γ

de 1,28 MeV dans ^{22}Na corresponde à E_2 plutôt qu'à M_1''. Le coefficient est difficile à mesurer s'il est de l'ordre de 10^{-4}, mais actuellement sa valeur suggère M_1 plutôt que E_2. Le point intéressant est que cette conversion se signale par une discontinuité au cours de la mesure du spectre β « complet ».

Rapport sur un travail récent de Moljk et Curran. — Les recherches de Moljk et Curran sur le spectre β de ^{14}C et ^{35}S ont été entreprises pour étudier certaines différences, dans le spectre de ^{14}C, entre l'expérience et certaines formes théoriques permises (*voir* Mize et Zaffarano).

Une étude des déformations apportées au spectre des sources utilisées, par les conditions des expériences, a montré que l'intégration graphique permettait d'estimer exactement la distortion due à la sortie et à l'entrée dans l'espace de comptage. Cette correction des valeurs observées était plus grande dans la région de basse énergie (inférieure, par exemple, à 10 keV) où elle atteignait environ 5 pour 100.

L'isotope ^{35}S était introduit dans le compteur proportionnel, placé dans un champ axial de 4 500 gauss, sous forme de vapeurs de CS_2.

Le spectre expérimental était analysé avec un sélecteur d'amplitude à 100 canaux du type Hutchinson-Scarrot, fondé sur le principe de l'accumulation par un circuit à transmission différée.

Le spectre théorique permis de ^{35}S était modifié pour tenir compte de la limitation par l'appareil discutée plus haut. Ce spectre corrigé a été comparé avec les données d'observation : l'accord entre les deux a été constaté, à 1 pour 100 près, depuis 3 keV jusqu'à l'énergie limite de 165 keV. ^{14}C était introduit dans le compteur sous forme de CH_4. La forme du spectre calculée en supposant la transition permise a été comparée avec les résultats expérimentaux corrigés : l'accord était excellent au-dessus de 2 keV, et jusqu'à l'extrémité. Les corrections des données d'observation avaient été déduites dans ce cas de la comparaison entre les valeurs expérimentales et théoriques pour ^{35}S.

Cette méthode mixte, dans laquelle ^{35}S est pris comme noyau de référence, est plus directe que celle utilisée pour ^{35}S lui-même, et cet emploi de substances étalons peut être largement utilisé.

Le travail décrit ci-dessus a donné des résultats importants dans l'étude du spectre β^+ de ^{22}Na. Dans ce cas, le spectre observé par Moljk était voisin du spectre théorique, jusqu'aux très basses énergies (~ 1 keV). La recherche des électrons Auger émis pendant le processus de capture K semblait indiquer qu'ils formaient peut-être 4 pour 100 des désintégrations. Il faut poursuivre le travail sur l'effet de l'épaisseur de la source sur l'émission des électrons d'énergie voisine de 1 keV. Tout permet d'espérer que l'étude directe pour mettre en évidence la capture K dans la désintégration de ^{40}K, dont on peut obtenir des échantillons enrichis en isotope actif, sera couronnée de succès.

L'étude des sources de faible intensité a montré que le bruit de fond est du à l'interaction entre les quanta γ et la cathode solide. Ces quanta γ pénètrent à travers la paroi de Geiger en anticoïncidence. Un nouveau tube proportionnel dont la cathode sera formée de plusieurs fils fins permettra de tourner à peu près complètement cette difficulté. Les particules qui traverseront la paroi environnante seront écartées de la région sensible par l'application d'un champ magnétique déflecteur. Avec un tel compteur ultrasensible et des sources gazeuses, on doit pouvoir explorer avec un meilleur succès la région des très basses énergies.

BIBLIOGRAPHIE.

[1] Curran S. C., Dixon D. et Wilson H. W. — *Phil. Mag.*, 1951, **43**, 82.
[2] Libby W. F. — *Phys. Rev.*, 1939, **56**, 21.
[3] Flammersfeld A. et Mattauch J. — *Naturwiss.*, 1943, **31**, 66.
[4] Flammersfeld A. — *Z. Naturf.*, 1947, **2 a**, 86.
[5] Goldhaber M. et Hill R. D. — *Rev. Mod. Physics*, 1952, **24**, 179.
[6] Goldhaber M. — Non publié.
[7] Arnold J. R. et Sugihara T. — *Phys. Rev.*, 1953, **90**, 332.
[8] McGowan F. K. — *Phys. Rev.*, 1952, **87**, 542.
[9] Mihelich J. W. et Church E. L. — *Phys. Rev.*, 1952, **87**, 691.
[10] Rose M. E., Gœrtzel G. H. et Spinrad B. I. — *Phys. Rev.*, 1951, **83**, 79.
[11] Schuler H. et Gollnow H. — *Z. Physik*, 1939, **113**, 1.
[12] Klinkenberg P. F. A. — *Physica*, 1951, **17**, 715.
[13] Tomozawa V., Umezawa M. et Nakamura S. — *Phys. Rev.*, 1952, **86**, 791.
[14] Sherrer P. et Zingg E. — *Helv. Phys. Acta*, 1939, **12**, 283.
[15] Lougher E. T. et Rowlands S. — *Nature*, 1944, **153**, 374.
[16] Seliger H. H. et Bradt H. L. — *Phys. Rev.*, 1948, **73**, 1408.
[17] Naldrett S. N. et Libby W. F. — *Phys. Rev.*, 1948, **73**, 487.
[18] Sugerman N. — *Phys. Rev.*, 1948, **73**, 1416.
[19] Gauthé B. et Blum J. M. — *C. R. Acad. Sc.*, 1953, **236**, 1255.
[20] Curran S. C. — Proc. Internat. Conf. on β and γ Radioactivity, Amsterdam, 1952.

LE RÔLE DE LA CONVERSION INTERNE DANS L'ÉTUDE DES TRANSITIONS ISOMÉRIQUES

Par M. GOLDHABER,
Brookhaven National Laboratory, Upton, New-York.

Summary. — The rate with which internal conversion takes place in competition with γ-ray emission can be calculated with great accuracy for a given electron distribution and given multipolarity and energy of the γ-ray. An experimental determination of the internal conversion coefficient, and sometimes only of the $\frac{K}{L}$ or $L_{I} : L_{II} : L_{III}$: ratio, forms therefore a very useful " tool " for the study of nuclear γ-ray transitions.

Les transitions isomériques fournissent de nombreux détails concernant la structure des noyaux. La théorie électromagnétique permet le traitement quantitatif de la conversion interne, un phénomène qui a été largement étudié depuis plusieurs années. La conversion interne entre en compétition avec l'émission de radiations γ : une fraction des noyaux excités se désintègre par émission γ, l'autre fraction par transfert d'énergie aux électrons K, L, etc. du cortège électronique. La vie moyenne d'un noyau excité dépend donc du coefficient de conversion interne $\alpha = \frac{N_e}{N_\gamma}$ et est proportionnelle à $\frac{1}{1+\alpha}$. Comme on doit s'attendre à ce que la conversion interne dépende du détail de l'environnement électronique, la vie moyenne d'un isomère doit dépendre de la combinaison chimique dans laquelle il est engagé, comme on l'a récemment montré dans un cas particulier, celui de ^{99}Tc (6 h) [1].

Pour calculer la vie moyenne des isomères, on peut utiliser les coefficients de conversion K calculés par Rose et ses collaborateurs [2] et les rapports empiriques $\frac{K}{L}$ [3] et $L_{I} : L_{II} : L_{III}$ [4]. Ces rapports empiriques pourront bientôt être remplacés par les valeurs calculées du coefficient de conversion interne pour le niveau L. Avec l'aide des coefficients de conversion obtenus empiriquement ou théoriquement, il a été possible de caractériser la plupart des transitions isomériques par le plus bas caractère multipolaire (E_5, ..., E_1 et M_1, ..., M_4), et le pourcentage des multipôles plus élevés (*voir* par exemple la référence [3]). Ces identifications ont été d'un grand secours dans le développement du modèle en couches.

On rencontre essentiellement trois méthodes pour la mesure des coefficients de conversion interne :

1° La détermination absolue du nombre d'électrons de conversion N_e, $\{(N_e)_{L}$ ou $(N_e)_K$, $(N_e)_L$, etc. $\}$ et du nombre de photons γ non convertis N conduisant à

$$\alpha_{K,L\ldots} = \frac{(N_e)_{K,L\ldots}}{N_\gamma};$$

2° la mesure du rapport de N_γ ou N_e relatif à une radiation α, β, ou γ précédant ou suivant la conversion quand on connaît le schéma de désintégration;

3° la détermination du rapport de N_γ au nombre de rayons X K, N_K, qui accompagne la conversion interne dans le niveau K; de la connaissance du rapport $\frac{N_K}{N_\gamma}$ et du facteur de fluorescence, on déduit la valeur de α_K.

Les électrons de conversion interne sont accompagnés d'un faible bremsstrahlung (de l'ordre de 0,1 pour 100 par électron). Quand $\frac{N_e}{N_\gamma}$ atteint ou dépasse 1000, ce spectre continu peut devenir plus intense que les raies γ non converties. Le continuum observé pour ^{192}Ir (1,5 mn) [5] a été récemment expliqué de cette façon par Mize, Starner et Bunker [6].

Quand le coefficient de conversion interne devient si grand que les photons non convertis ne peuvent être observés les rapports $\frac{K}{L}$ ou $L_{I} : L_{II} : L_{III}$ peuvent souvent être utilisés avec succès pour fixer le caractère de la transition, surtout lorsqu'elle correspond à un ordre multipolaire pur. Les mélanges de multipôles les plus couramment rencontrés sont : $M_1 + E_2$ et $E_1 + M_2$. Les multipôles plus élevés sont généralement presque purs. Ces mélanges nous fournissent des détails d'une grande finesse concernant la structure des noyaux, mais l'interprétation précise de ceux-ci est encore en discussion.

BIBLIOGRAPHIE.

[1] Bainbridge K. T., Goldhaber M. et Wilson E. — *Phys. Rev.*, 1953, **90**, 430.
[2] Rose, Gœrtzel, Harr, Spinrad et Strong. — *Phys. Rev.*, 1951, **83**, 79.
[3] Goldhaber M. et Sunyar A. W. — *Phys. Rev.*, 1951, **83**, 906.
[4] Mihelich J. W. — *Phys. Rev.*, 1952, **87**, 646.
[5] Goldhaber M., Muehlhause C. O. et Turkel R. — *Phys. Rev.*, 1947, **71**, 372.
Der Mateosian E. et Goldhaber M. — *Phys. Rev.*, 1951, **82**, 115.
[6] Mize J. P., Starner J. W. et Bunker M. E. — *Bull. A. P. S.*, 1954, **29**, K. A. 10, 39.

SUR LA LARGEUR PROPRE DES RAIES D'ÉLECTRONS DE CONVERSION

Par MANUEL VALADARES,
Laboratoire de l'Aimant Permanent, C. N. R. S., Bellevue.

Summary. — The relation which exists between the width of conversion lines and the width of X-ray absorption discontinuities is discussed.
The knowledge of the natural width of conversion lines could contribute to the solution of a certain number of problems that are indicated.

L'étude expérimentale des discontinuités d'absorption des spectres de rayons X a permis de déterminer directement, malgré les difficultés de l'expérience, la largeur de certains niveaux d'absorption d'éléments de numéro atomique élevé. Ainsi Richtmyer, Barnes et Ramberg ont étudié (1934) la largeur des niveaux d'absorption L de l'or, en employant un spectrographe à double cristal.

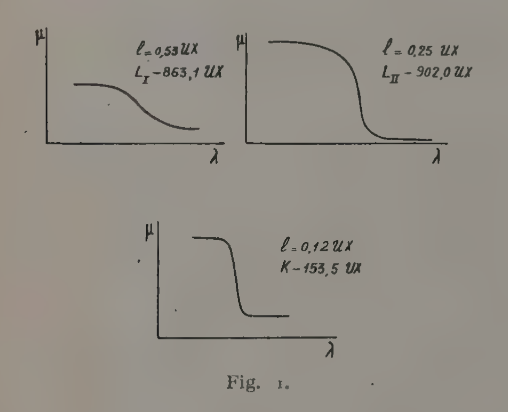


Fig. 1.

La figure 1 reproduit les courbes de ces auteurs pour les niveaux L_I et L_{II} ; en abscisses sont indiquées les longueurs d'onde λ et, en ordonnées, les coefficients d'absorption μ correspondant à chaque longueur d'onde. On obtient la largeur l du niveau correspondant par l'emploi de la formule

$$\mu(\nu) = \frac{b\left[\pi - 2 \operatorname{arc\,tg}\left\{\frac{2(\nu_0 - \nu)}{l}\right\}\right]}{2\pi} \qquad (v.\ \text{Burhop}).$$

Nous avons représenté sur la même figure une courbe correspondant à l'absorption dans la couche K de l'or; mais nous devons ajouter que cette courbe n'est pas expérimentale; elle est déduite indirectement de la largeur des raies du spectre K de l'or, en admettant, avec Weisskopf et Wigner (1930), que la largeur d'une raie K est égale à la somme des largeurs du niveau K et du niveau d'ionisation de l'état final de la transition.

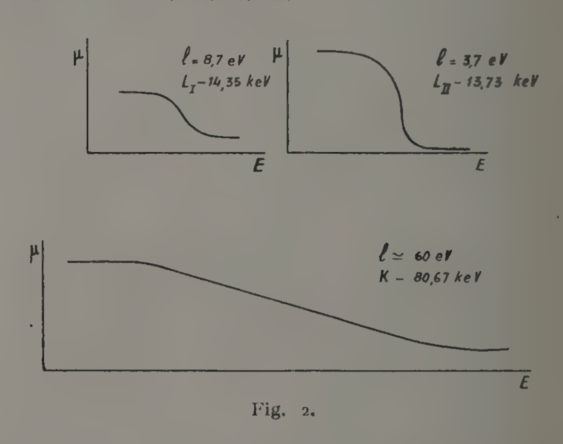


Fig. 2.

La figure 1 met en évidence la difficulté que comporterait la recherche expérimentale de la largeur du niveau K si l'on remarque que la discontinuité K de l'or se place dans la région de 150 UX très difficile à explorer.

Cette figure pourrait peut-être induire en erreur en ce qui concerne les largeurs relatives en énergie des niveaux K et L; c'est pour cela que nous avons cru utile de reproduire les mêmes données expérimentales dans la figure 2, en représentant maintenant, en abscisses, les énergies des rayonnements X considérés.

La justification théorique des ordres de grandeur des rapports des largeurs de niveaux a été donnée par Margeneau (1935).

Étant donné la difficulté d'aborder expérimentalement, par diffraction cristalline, l'étude de la discontinuité K, on serait tenté de recourir à l'effet photoélectrique pour effectuer cette détermination. En effet, on pouvait concevoir une expérience réalisée avec un faisceau correspondant à une raie spectrale de rayons X et dans laquelle on étudierait la largeur des groupes de photoélectrons expulsés. On aurait alors des groupes de photoélectrons dont la largeur serait une fonction de la largeur du rayonnement X et des largeurs des niveaux d'où proviennent les photoélectrons. Dans ce cas, comme l'énergie des électrons du groupe K est plus faible que l'énergie des groupes L, il n'y aurait pas lieu de craindre les difficultés de la spectrographie cristalline. Pourtant, une telle expérience n'a jamais été tentée parce que la dispersion introduite dans le faisceau de photoélectrons, due à l'épaisseur de la cible, est telle que le phénomène de largeur naturelle serait tout à fait caché. C'est-à-dire, pour que l'expérience puisse réussir, il faudrait avoir une couche extrêmement mince et, à la fois, un effet photoélectrique suffisant pour que le phénomène puisse être observé. Pour remplir ces conditions, il faudrait recourir au phénomène de conversion interne. En effet, on peut alors disposer de sources pratiquement sans matière et — avantage supplémentaire — la largeur des raies γ est pratiquement négligeable vis-à-vis des largeurs des niveaux du cortège électronique.

Il était, par conséquent, à prévoir que lorsqu'on pourrait perfectionner suffisamment la spectrographie des électrons de conversion on arriverait à mesurer les largeurs des différents niveaux de conversion.

Pourtant, historiquement, ce n'est pas un raisonnement de ce type qui a conduit à l'observation du phénomène; celle-ci a été le résultat des perfectionnements techniques successivement introduits, par l'École Suédoise, dans la spectrographie magnétique β. Ainsi, Lindström a été le premier (1952) à constater que la largeur de la raie F (conversion en K) était plus grande que celle de la raie I (conversion en L) du spectre d'électrons de conversion du Th B. Ce résultat a été contrôlé postérieurement et étendu à d'autres raies du même spectre par Slätis et Lindström. La figure 3 reproduit l'analyse microphotométrique de trois raies de ce spectre effectuée par ces auteurs; on y voit que les raies G et K correspondant à la conversion en K sont plus larges que la raie I_a correspondant à la conversion en L_{II}.

C'est à Kaï Siegbahn qu'on doit l'interprétation de cette différence de largeur considérant qu'elle est une conséquence de la largeur propre à chaque niveau du cortège électronique, comme il ressort des raisonnements ci-dessus.

On peut prévoir d'ores et déjà quelques applications importantes résultant de la mesure de la largeur des raies d'électrons de conversion :

1° Pour le classement des raies des spectres d'électrons de conversion. Un exemple suffira à démontrer l'intérêt d'une pareille étude; bien que le spectre du Th $B + C$ ait été un des plus étudiés parmi les spectres des radioéléments naturels, on trouve encore dans ce spectre 26 raies (sur un total de 87) qui n'ont pas pu être interprétées d'une façon sûre. Or, si l'on arrive à mesurer la largeur de ces raies, on pourra immédiatement les classer

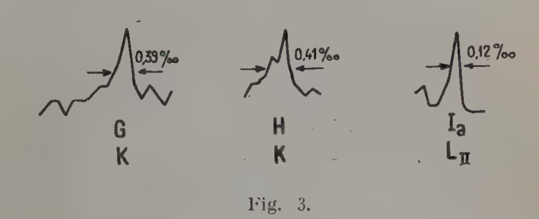


Fig. 3.

d'après leurs niveaux d'origine. D'autre part, on pourra contrôler si certaines raies qui ont été interprétées comme correspondant à une double conversion présentent, en conséquence, une largeur anormale;

2° pour distinguer les raies d'effet Auger des raies de conversion de rayonnements γ. En effet, une raie d'effet Auger correspondant, par exemple, à la transition $K \rightarrow LL$ fait intervenir la largeur de trois niveaux du cortège électronique et elle doit présenter, par conséquent, d'une façon générale, une largeur propre différente de celle d'une raie de conversion γ.

Cette étude contribuera non seulement à l'interprétation des spectres d'électrons, mais pourra encore nous fournir des renseignements importants sur l'effet Auger, surtout en ce qui concerne la couche L, couche pour laquelle on possède très peu de données expérimentales;

3° pour mesurer la largeur des différents niveaux du cortège électronique. En effet, si l'on choisit convenablement les transmutations à étudier, on pourra déterminer les largeurs K, L, M, ... en employant des raies de faible énergie. Par exemple, si l'on veut déterminer la largeur du niveau K de $Z = 86$ on pourra choisir la transmutation radium $\rightarrow$ radon; dans cette transmutation il y a émission d'un rayonnement γ de 186 keV, auquel correspond une raie de conversion K de 88 keV placée dans un domaine d'énergie dont l'étude n'est pas particulièrement difficile.

Parallèlement il semble qu'on devrait reprendre l'étude expérimentale des largeurs des discontinuités d'absorption de rayons X. En effet, l'expérience a

montré, notamment dans les cas de l'étude de la forme et de l'intensité des bandes satellites des spectres L et des largeurs des raies des spectres K, que le spectrographe à transmission du type Cauchois est un instrument beaucoup plus puissant que le spectrographe à double cristal. Il est à prévoir, par conséquent, qu'une nouvelle étude des discontinuités d'absorption des éléments de numéro atomique élevé par spectrographe à transmission puisse conduire à des résultats intéressants dans un domaine qu'on peut considérer encore aujourd'hui comme inexploré.

---

*Intervention de M*me *Joliot-Curie.* — Peut-on prévoir théoriquement la largeur des raies Auger ?

Réponse de M. Valadares. — On prévoit que les raies Auger seront plus larges que les raies de conversion du fait que dans leur émission interviennent trois couches électroniques.

BIBLIOGRAPHIE.

BURHOP. — The Auger Effect., Cambridge University Press., 1952, p. 84.
LINDSTRÖM. — *Arkiv Fysik*, 1952, **4**, n° 1.
MARGENAU. — *Phys. Rev.*, 89, **47**, 1935.
RAMBERG et RICHTMYER. — *Phys. Rev.*, 1937, **51**, 913.
RICHTMYER et RAMBERG. — *Phys. Rev.*, 1937, **51**, 925.
RICHTMYER, BARNES et RAMBERG. — *Phys. Rev.*, 1934, **46**, 843.
SLÄTIS et LINDSTRÖM. — *Phys. Rev.*, 1952, **88**, 1429.
SLÄTIS. — *Arkiv Fysik*, 1953, **6**, 415.
WEISSKOPF et WIGNER. — *Z. Physik*, 1930, **63**, 54.

LES LARGEURS DES RAIES DE CONVERSION

Par Milorad MLADJENOVIĆ,
Institut de recherches nucléaires, Belgrade.

Summary. — Measurements of the width of the principal lines of the internal conversion spectrum of Ra *B*. Examination of the factors which could give the conversion lines widths different than those obtained by X-ray analyses.

C'est en faisant les mesures précises de l'énergie des raies des conversions *F* et *I* de Th*B* par un spectromètre semi-circulaire magnétique, que G. Lindstrom [1] a observé une différence de largeur entre la raie *F* (conversion en couche *K*) et la raie *I* (conversion en couche *L*), la raie *F* ayant une largeur de 0,14 pour 100 alors que la raie *I* avait la largeur de 0,10 pour 100. La différence de 0,04 pour 100 correspond à 105 eV. Ceci fut confirmé par les mesures faites par H. Slatis [2] avec un spectromètre β à aimant permanent, qui a trouvé que les autres raies de conversion en couche *K*, les raies *G* et *H* de Th *B* sont plus larges que la raie I_a convertie dans la couche L_{II}, de 0,027 et 0,029 pour 100 respectivement.

Ces résultats furent présentés, par K. Siegbahn à la Conférence de radioactivité β et γ à Amsterdam, et c'est alors que M. Deutch suggéra que ces différences sont de l'ordre de grandeur des largeurs des niveaux *K* des atomes. K. Siegbahn [1] a ensuite trouvé que les largeurs des raies de conversion *K* sont de même grandeur que les largeurs des raies K_α des rayons X.

L'auteur a étudié les largeurs des raies de conversion interne de Ra*B*, avec le spectromètre à focalisation double de l'Institut Nobel [3].

La figure 1 montre schématiquement le spectromètre avec l'appareillage adjoint. Puisque la période de Ra*B* est courte, on s'est servi d'un spectromètre à cristal de NaI(Tl) comme moniteur. D'autre part, on a employé un compteur Geiger-Muller double pour réduire le bruit de fond qui est élevé à cause de la présence de radon et Ra*B* dans la chambre du spectromètre. Le moniteur et le compteur Geiger-Müller ont été connectés à un interrupteur qui permettait la mise en marche simultanée de deux circuits et la coupure automatique du circuit Geiger-Müller par le moniteur lorsque celui-ci a enregistré un nombre prédéterminé de coups.

Avec une source de dimensions 0,21 × 6 mm et l'angle solide de 0,007 × 4, on a obtenu la résolution de 0,043 pour 100.

La figure 2 montre les raies principales du spectre de conversion interne de Ra*B*. Les intensités des raies ont été normalisées à la même hauteur. Les résultats montrent sans aucun doute que les raies de conversion en couche *K* sont plus larges que les raies de conversion en couche *L*, qui ont une énergie voisine de celle des raies *K*.

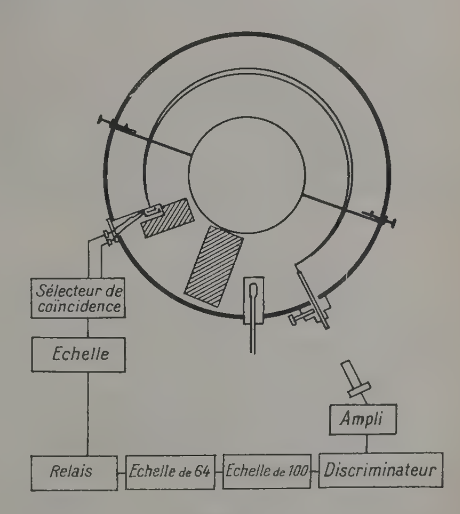


Fig. 1.

Avant de passer à une estimation quantitative des différences de largeur, il faut se rappeler que les mesures ont été faites avec un spectromètre dont les pièces polaires sont en fer, ce qui a pour conséquence que la géométrie du champ dépend de son intensité. Le changement de la géométrie peut provoquer un changement de la résolution. Il est très difficile de mesurer ce changement. Pour cette raison, nous ferons seulement une comparaison entre deux paires de raies *K* et *L* très voisines l'une de l'autre, en réduisant ainsi au minimum l'erreur possible due au changement de la résolution.

On trouve alors que la différence des largeurs des raies observées est pour la paire G-G_α égale à 0,025 pour 100 et pour la paire H-H_α 0,024 pour 100, ce qui donne respectivement 88 et 104 eV.

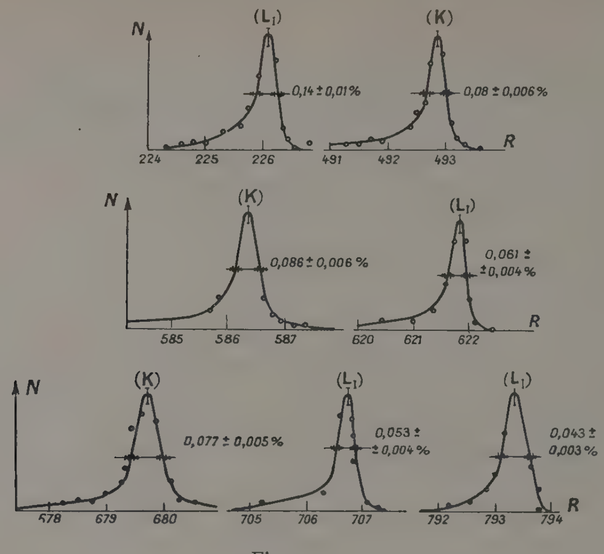


Fig. 2.

Évidemment, ce qui nous intéresse, ce ne sont pas les largeurs des distributions observées, mais les largeurs des distributions vraies. Il faut trouver la vraie distribution $f(x)$ à partir d'une distribution instrumentale $g(x)$ et résoudre l'équation

$$F(x) = \int_{-\infty}^{+\infty} f(\xi)\, g(x-\xi)\, \mathrm{d}\xi.$$

Si les distributions ont la forme d'une courbe de Gauss ou d'une courbe de dispersion, cette équation peut être résolue analytiquement. Les courbes expérimentales ne correspondent d'habitude ni à l'une ni à l'autre de ces distributions et la seule façon de procéder alors est de trouver une solution par calcul numérique.

Il est important de connaître la distribution instrumentale $g(x)$. Une façon de trouver $g(x)$ est de mesurer une raie d'énergie suffisamment grande, pour laquelle les effets de l'ordre de 100 eV seraient négligeables : toute largeur de la raie serait alors due à la méthode expérimentale. Ceci est plus commode dans le cas de Ra $B + C$ qui a plusieurs raies de forte intensité entre 0,6 et 1,7 MeV, alors que dans le cas de Th $B + C$ l'intensité des raies de haute énergie est petite. Mais, d'autre part, la courte vie de Ra B conduit à des difficultés de mesure assez grandes. Pour ces raisons, les vraies valeurs des largeurs des raies K et L n'ont pas encore été trouvées. Les différences entre les valeurs des largeurs observées des raies K et L ne donnent qu'une approximation assez grossière des différences des vraies largeurs. Il suffit, pour s'en rendre compte, de se rappeler que, dans le cas des courbes de dispersion, la largeur observée est égale à la somme des largeurs de la distribution vraie et de la distribution instrumentale, alors que dans le cas des courbes de Gauss, c'est le carré de la largeur observée qui est égal à la somme des carrés de la distribution vraie et de la distribution instrumentale.

La différence des largeurs observées des raies K et L serait égale à la différence des largeurs vraies dans le cas où la largeur vraie de la raie L est négligeable, et où les distributions ont la forme des courbes de dispersion. Comme les distributions n'ont pas la forme d'une courbe de dispersion, on peut prévoir que les vraies largeurs et différences augmenteront, mais d'autre part la largeur des raies L pourrait ne pas être négligeable, ce qui aurait pour effet de diminuer la différence. La conclusion que l'on peut en tirer est qu'il n'est pas déraisonnable de considérer les différences des largeurs observées des raies K et L comme une première approximation des différences des largeurs vraies, en attendant que celles-ci soient déterminées d'une façon précise.

Nous avons réuni dans le tableau I les données sur les largeurs observées par différents auteurs. Le meilleur instrument pour l'étude des largeurs des raies est probablement le spectromètre à focalisation double sans fer, employé par K. Siegbahn. Dans une analyse préliminaire [4], il obtient en retranchant des largeurs observées les largeurs dues à la fenêtre et aux dimensions finies de la source, la

valeur de 76 eV pour la différence des largeurs vraies des raies K et L. Pour compléter l'analyse, il faudrait aussi retrancher les largeurs dues aux aberrations, ce qui aurait pour effet d'augmenter un peu la différence de largeur vraie des raies K et L. Nous prendrons dans ce qui suit le chiffre de 80 eV comme la différence la plus probable des largeurs vraies des raies K et L.

TABLEAU I.

Différence entre les largeurs observées des raies de conversion interne K et L.

Auteur.	Type de spectromètre.	Présence de fer.	Type de détecteur.	Nuclide.	Nom de la raie.	Origine de la raie.	Énergie de la raie (keV).	Largeur observée à la demi-hauteur du maximum en pour 100 de $H\rho$.	Différence de largeur en pourcentage de $H\rho$	Différence de largeur en eV.
Lindström....	Semi-circulaire	Oui	Compteur	Th $B+C$	F	K	147,8	0,14	0,04	105
					I	L_I	221,8	0,10		
Slätis........	A aimant permanent	Oui	Film	»	F	K	147,8	0,06	0,042	108
					I	L_I	221,8	0,018		
					G	K	188,8	0,039	0,027	88
					I_a	L_{II}	222,4	0,012	0,029	104
					H	K	209,7	0,041		
Marinkov.....	Lentille longue	Non	Compteur	»	F	K	147,8	0,149	0,043	110
					I	L_I	221,8	0,106		
Siegbahn.....	Double focalisation	Non	»	»	F	K	147,8	0,056	0,037	95
					I	L_I	221,8	0,019		
					J	M_I	234,0	0,020	–	–
Mladjenovic...	Double focalisation	Oui	»	Ra $B+C$	G	K	204,7	0,086	0,025	88
					G_a	L_I	225,5	0,061		
					H	K	261,3	0,077	0,024	104
					H_a	L_I	278,7	0,053		
					Valeur moyenne					100 eV

Cette valeur devrait être comparée à la différence des largeurs des niveaux K et L_I des atomes, obtenue par l'analyse des spectres X. Il résulte des travaux d'Ingelstam [5] et d'une extrapolation qui étend aux valeurs inférieures de Z les résultats donnés par Compton et Allison [6] et par Gokhale [7], que la largeur du niveau K de ^{83}Bi est de 60 ± 5 eV. On peut déduire des travaux de Williams [8] et de Richtmyer [9] que la largeur du niveau L_I est 10,6 eV. On obtient pour la différence des largeurs des niveaux K et L_I la valeur de 50 eV.

En comparant cette valeur à la valeur très préliminaire de 80 eV obtenue par la conversion interne, on peut conclure qu'une possibilité existe pour que la différence des largeurs des raies de conversion K et L soit supérieure à la différence des largeurs des niveaux K et L mise en évidence par l'analyse X. Il serait donc intéressant de voir s'il y a des raisons possibles pour un désaccord entre les largeurs obtenues par la conversion interne et les largeurs obtenues par l'analyse des rayons X. On peut voir que, d'une manière générale, il existe quelques différences essentielles entre les deux phénomènes.

1° Tout d'abord, dans la conversion interne il y a une interaction entre le noyau et le cortège. Il faut donc voir si le noyau pourrait influencer les largeurs des raies. Le recul du noyau après la désintégration β est, dans le cas de RaB, très faible. L'énergie de recul est égale à 0,65 eV, ce qui est tout à fait négligeable. La probabilité de l'excitation de l'atome par la variation brusque de la vitesse du noyau a été calculée par Levinger [10], et l'on trouve qu'elle est de l'ordre de 10^{-6} dans le cas de RaB, donc négligeable. Finalement, nous devons considérer les largeurs des niveaux nucléaires qui doivent être ajoutées aux largeurs des niveaux atomiques pour donner les largeurs totales des raies de conversion. Dans le cas des transitions $M1$ et $E2$, les largeurs des niveaux nucléaires sont inférieures à 10^{-6} eV. Théoriquement, seule la transition $E1$ avec une période de 10^{-17} s pourrait donner une largeur de 60 eV. La mesure des largeurs des raies L permettrait de mettre en évidence l'existence de ces transitions rapides que l'on considère comme assez douteuses.

2° La deuxième différence consiste dans le fait que la conversion interne est précédée par la désintégration β, ou par une autre conversion, qui peu-

vent causer l'ionisation de l'atome. L'ionisation, si elle subsistait encore au moment de la conversion interne, changerait l'énergie de liaison des électrons, ce qui aurait pour effet d'élargir les raies.

La probabilité d'ionisation des couches K, L et M pour ^{83}Bi est de l'ordre de 10^{-4}. Par extrapolation, on obtient que pour les couches extérieures cette probabilité doit être de l'ordre de 10 pour 100. Dans une mesure récente, Vexler [11] a trouvé que la charge du noyau de recul de ^{41}A et ^{41}C est égale à $1 \pm 0{,}1\, e$ et $1 \pm 0{,}2\, e$ respectivement.

Dans le cas de conversion interne, la cascade Auger qui la suit laisse l'atome plusieurs fois ionisé. Les valeurs expérimentales de 2 à 7 e pour la charge de l'atome ont été trouvées, alors que Cooper [12] a calculé que 10^{-9}s après la conversion dans Br, la charge est égale à 4,7 e.

Nos connaissances de l'état d'ionisation de l'atome après la désintégration β ou la conversion, ne sont pas suffisantes pour décider si ces phénomènes pourraient influencer les largeurs des raies.

3° La troisième différence consiste dans le fait que l'interaction de l'électron avec le cortège électronique est différente de celle des photons. L'électron qui est expulsé de la couche K, par exemple, doit passer à travers le cortège électronique du même atome. La probabilité d'ionisation a été calculée par Feinberg [13] et l'on trouve que cet effet est plus faible que l'effet du changement de Z.

Intervention de M. Winther. — On pourrait penser aussi à une autre explication de la différence entre les largeurs des raies de conversion K et L : quand les électrons K ou L sont arrachés rapidement de l'atome celui-ci reste dans un état non stationnaire, et cela implique une certaine largeur pour la raie de conversion. On s'attendrait à ce que la largeur de la raie K soit supérieure à celle de la raie L, et aussi à ce que, pour les faibles énergies, le processus devenant adiabatique, les raies soient fines.

Intervention de M. Deutsch en réponse à M. Winther. — Les phénomènes dont vous avez parlé ne se traduiraient-ils pas par une série de raies distinctes correspondant à différents états de l'ion final ?

Intervention de M. Riou. — Les transitions γ dipolaires électriques de faible énergie ayant une vie moyenne de quelques 10^{-7} s, la largeur correspondante ne peut absolument pas expliquer la largeur des raies de conversion interne.

BIBLIOGRAPHIE.

[1] Slatis H. et Lindstrom G. — *Phys. Rev.*, 1954, **88**, 1429 (L).
[2] Slatis H. — *Arkiv f. Fysik*, 1953, **6**, n° 41.
[3] Mladjenovic' M. — *Arkiv f. Fysik*, 1954, **8**, n° 3.
[4] Communication privée.
[5] Ingelstam K. — *Nova Acta regiae Soc. S. C. Upsaliensis*, série IV, **10**, n° 5.
[6] Compton et Allison. — X rays in Theory and Experiment.
[7] Gokhale B. G. — *Ann. Physique*, 1952, **7**, 852.
[8] Williams J. — *Phys. Rev.*, 1934, **45**, 71.
[9] Ramberg E. et Rychtmyer F. — *Phys. Rev.*, 1937, **51**, 913.
[10] Levinger L. — *Phys. Rev.*, 1953, **90**, 11.
[11] Vexler S. — *Phys. Rev.*, 1954, **93**, 182.
[12] Cooper E. — *Phys. Rev.*, 1942, **61**, 1.
[13] Feinberg E. — *J. Physics U. R. S. S.*, 1941, **4**, 423.

INFLUENCE DE L'ÉTAT PHYSIQUE SUR LA PÉRIODE DU ^{7}Be

Par R. JACQUES.
Institut de Mécanique Ondulatoire Appliquée à la Chimie et à la Radioactivité.

Summary. — With the view to calculate the variation of the half-life of the ^{7}Be between the gazeous and the solid state, the electronic wave-function of the metallic Be is determined by three methods. The 3 d method, more precise, gives a variation of about 4 per 100. The energies obtained agree with those determined by other authors and with experimental data.

1. **Introduction.** — Plusieurs auteurs [1] ont signalé que la période de certains éléments radioactifs peut dépendre de façon mesurable de l'état chimique ou physique dans lequel se trouvent ces éléments.

En particulier, des expériences ont été faites sur la variation de la période de capture électronique du ^{7}Be en fonction de l'état chimique (^{7}Be, ^{7}BeO, $^7BeF_2$, $^7BeCl_2$, ...) Segré, Wiegand, Seitz [2] indiquent la possibilité d'une variation notable en fonction de l'état physique : entre le ^{7}Be à l'état gazeux et à l'état solide. Le travail théorique que nous présentons tend à préciser la valeur de cette variation.

La probabilité de capture électronique étant proportionnelle au carré de la fonction d'onde électronique totale, c'est-à-dire à la densité électronique, au voisinage du noyau, la comparaison des périodes est donnée simplement par le rapport des densités dans le Be solide et dans le Be gazeux. Pour ce dernier, des calculs de fonction d'onde précis ont été effectués par Hartree [3], auquel nous pourrons emprunter ses résultats.

2. **La fonction d'onde électronique du Be métallique.** — Dans le Be métallique, les noyaux de Be sont disposés suivant une structure hexagonale à réseau serré, chaque atome de Be occupant une « cellule » de volume moyen $\Omega = 54$ u. a.

La fonction d'onde électronique totale est supposée formée d'un déterminant de Slater construit sur les fonctions monoélectroniques : Φ_{ks} correspondant aux états de cœur, c'est-à-dire aux états localisés près des noyaux de Be, et Ψ_k correspondant aux états de valence, qui s'étendent sur tout le métal.

La densité électronique totale sera au point r :

$$\mathcal{D}(x) = \sum_k |\Phi_{sk}(r)|^2 + \sum_k |\Psi_k(r)|^2, \qquad (1)$$

pourvu que les Φ_{sk} et les Ψ_k forment un ensemble orthonormalisé

$$\int \Phi^*_{sk}\Phi_{sk'} = \int \Psi^*_k \Psi_{k'} = \delta_{kk'}, \qquad \int \Phi^*_{sj}\Psi_k = 0. \qquad (2)$$

Les Φ_{sk} et Φ_k obéiront aux équations de Hartree-Fock qui peuvent s'écrire :

$$H_c \Phi_{sk} = E_{sk}\Phi_{sk}, \qquad (3)$$

$$H_{\text{val}}\Psi_k = E_k \Psi_k, \qquad (4)$$

avec

$$\left.\begin{aligned} H_c(r_1) &= H_1(r_1) + 2\int \frac{\mathcal{D}(r_2)}{r_{12}}\,dr_2 + V_{c,\,\text{éch}}(r_1), \\ H_{\text{val}}(r_1) &= H_1(r_1) + 2\int \frac{\mathcal{D}(r_2)}{r_{12}}\,dr_2 + V_{\text{val},\,\text{éch}}(r_1); \end{aligned}\right\} \qquad (5)$$

$$H_1(r) = -\Delta - 2\sum_n \frac{Z_n}{|r - r_n|}$$

= énergie cinétique
+ potentiel des deux noyaux de charge Z_n (6)
situés aux points r_n.

$2\int \frac{\mathcal{D}(r_1)}{r_{12}}\,dr_2$ représente le potentiel coulombien dû à la densité électronique totale. Pour le potentiel d'échange, on aura une bonne approximation, au moins dans le cas des états de valence, en prenant l'expression simplifiée proposée par Slater [4] :

$$V_{\text{éch}}(r) = -6\left\{\frac{3}{8\pi}\mathcal{D}(r)\right\}^{\frac{1}{3}} = V_{c,\,\text{éch}}(r) = V_{\text{val},\,\text{éch}}(r). \qquad (7)$$

Dans ce cas, $H_c = H_{\text{val}}$ et les solutions Φ_{sk} et Ψ_k sont automatiquement orthogonales.

États de cœur. — Nous exprimerons les Φ_{sk} sous la forme d'une fonction d'onde de Bloch :

$$\Phi_{sk} = \sum_n e^{ik.r_n}\, u_s(r - r_n), \qquad (8)$$

(3) devient alors :

$$\sum_n e^{ik.r_n}[H_c\, u_s(r-r_n) - E_{sk}\, u_s(r-r_n)] = 0. \qquad (3')$$

Si les fonctions u_s sont localisées autour des noyaux, les intégrales de recouvrement sont négligeables, c'est-à-dire :

$$\left.\begin{aligned} &\int u_s^*(r-r_n)\, u_s(r-r_m) = 0, \\ &\int u_s^*(r-r_n) H_c\, u_s^*(r-r_m) = 0 \quad \text{pour} \quad n \neq m. \end{aligned}\right\} \qquad (9)$$

D'où :

$$E_{sk} = \frac{\int \Phi_{sk}^* H_c \Phi_{sk}}{\int \Phi_{sk}^* \Phi_{sk}} = \frac{\sum_{nm} e^{ik(r_n-r_m)} \int u_s^*(r-r_m) H_c\, u_s(r-r_n)}{\sum_{nm} e^{ik(r_n-r_m)} \int u_s^*(r-r_m)\, u_s(r-r_n)}$$

$$\doteq \frac{\int_\Omega u_s^*(r) H_c\, u_s(r)}{\int_\Omega u_s^*(r)\, u_s(r)} = E_s, \qquad (10)$$

E_s étant indépendant de k.

L'orthogonalité est assurée puisque

$$\int \Phi_{sk}^* \Phi_{sk'} = \sum_{nm} e^{-i(k.r_n - k'.r_m)} \int u_s^*(r-r_n)\, u_s(r-r_m) = \sum_n e^{-i(k-k')r_n} \int_\Omega [u_s(r)]^2\, dr = 0; \qquad (11)$$

E_s et u_s seront donc définis par l'équation (3) : $H_c u_s = E_s u_s$, avec la condition $u_s(r) = 0$ à partir d'une distance de l'origine égale à environ la demi-distance entre deux noyaux.

L'hamiltonien H_c dans une cellule atomique du métal ne diffère de l'hamiltonien correspondant pour le Be gazeux que de termes faisant intervenir les électrons de valence. Par conséquent, les fonctions atomiques u_s différeront peu des fonctions de cœur du Be gazeux et la différence dans la densité totale proviendra principalement des états de valence.

États de valence. — Nous pouvons comme précédemment ramener la recherche des fonctions « métalliques » Ψ_k à celle des fonctions de forme atomique w_k en posant :

$$\Psi_k = \sum_n e^{ik.r_n}\, w_k(r-r_n).$$

Seulement ces fonctions w_k ne sont plus localisées au voisinage des noyaux. On pourra néanmoins les localiser dans une cellule atomique en écrivant :

$$\Psi_k = \sum_n e^{ik.r_n}\, w_k(r-r_n)\, \delta_{r,r_n} \qquad (12)$$

où $\delta_{r,r_n} \doteq 1$ si r est dans la cellule atomique de centre r_n et $\delta_{r,r_n} = 0$ si r est en dehors de cette cellule.

Entre les noyaux se trouve une zone où le potentiel varie lentement. Dans cette zone, Ψ_k est approximativement une onde plane :

$$\Psi_k = e^{ik.r}; \qquad (13)$$

w_k sera donc assujetti à l'équation

$$H_{\text{val}}\, w_k(r) = E_k\, w_k(r) \qquad (4')$$

dans une cellule avec la condition aux limites de la cellule :

$$w_k = e^{ik.r}, \qquad (14)$$

ce qui redonne bien (13) pour Ψ_k.

Pratiquement, nous prendrons un potentiel sphérique autour de chaque noyau, la région où le potentiel est variable étant comprise dans une sphère dite sphère atomique. Cette façon de procéder ne permet pas de tenir compte de l'influence de la structure du cristal sur la fonction d'onde, rien ne différenciant les fonctions d'onde de même $|k|$, mais de directions différentes. Pour en tenir compte, il faudrait prendre un développement de la forme :

$$\Psi_k \doteq \sum_i \beta_i \psi_{k_i}, \qquad (15)$$

où $k_i = k + K_i$, et les K_i étant les vecteurs d'onde fondamentaux du réseau cristallin réciproque, c'est-à-dire tels que $e^{iK_i.r}$ soit périodique dans le cristal. Néanmoins on peut supposer que la forme de la structure cristalline a peu d'influence sur la densité au voisinage des noyaux et se contenter, au moins en première approximation du premier terme du développement.

L'orthogonalité $\int \Psi_k^* \Psi_{k'} = 0$ est assurée, comme dans l'équation (11) en remplaçant $u_s(r-r_n)$ par $w_s(r-r)\, \delta_{r,r_n}$.

La condition $\int \Phi_{ks}^* \Psi_{k'} = 0$ donne

$$\sum_n e^{-i(k-k')r_n} \int_\Omega u_s^*(r)\, w_{k'}(r) = 0,$$

ce qui exige, puisque cette condition doit être remplie même pour $k = k'$:

$$\int_\Omega u_s^*(r)\, w_k(r) = 0. \qquad (16)$$

Nous calculerons w_k par trois méthodes : la

première méthode, simple et rapide, nous donnera une approximation de la densité à partir de laquelle nous pourrons calculer les potentiels qui entrent dans la définition de H_{val}. La deuxième méthode est basée sur un calcul variationnel de minimisation de l'énergie. La troisième méthode est basée sur une résolution directe de l'équation d'onde (4) ou (4').

3. **Première méthode : onde plane orthogonalisée simple.** — La façon la plus simple de construire une fonction w_k satisfaisant aux conditions (14) et (16) est de poser :

$$w_k = e^{i.kr} - \mu_{ks} u_s. \quad (17)$$

En effet, aux limites de la cellule, comme u est nul, $w_k = e^{ik.r}$. D'autre part (16) donne

$$\mu_{ks} = \frac{\int_\Omega e^{ik.r} u_s^*(r)\,dr}{\int |u_s(r)^2|\,dr}. \quad (18)$$

La fonction d'onde Ψ_k construite à partir de w_k ne satisfait pas à l'équation d'onde (4) puisque w_k ne satisfait pas à (4'). Il faudrait donc prendre pour Ψ_k un développement de la forme (15). Cependant, comme le remarquent Herring et Hill, qui ont introduit cette méthode [5] et Parmenter, qui l'a développé [6], ce développement est très rapidement convergent en raison même de l'orthogonalité, et le premier terme nous donnera une approximation au moins suffisante pour calculer le potentiel provenant des électrons de valence.

Nous ferons une approximation supplémentaire en négligeant la variation de la densité avec k, c'est-à-dire en prenant

$$|w_k|^2 \cong |w_0|^2 = (1 - \mu_{0s} u_s)^2.$$

Ceci revient à négliger des termes en $\frac{k^2}{\alpha^2}$ dont la valeur maxima est $\frac{K^2}{\alpha^2} = 0{,}08$, α étant défini par (25) et K par (45).

Finalement, la densité qui intervient dans le calcul du potentiel [éq. (5) et (7)] pourra s'écrire, d'après (1), (8), (12) :

$$\mathcal{D}(r) = \sum_n d(r - r_n)\,\delta_{r,r_n}, \quad (19)$$

avec

$$d(r) = d_c(r) + d_{\text{val}}(r) = 2\left\{\frac{|u_s(r)|^2}{\int_\Omega |u_s(r)|^2\,dr} + \frac{|w_0(r)|^2}{\int_\Omega |w_0(r)|^2\,dr}\right\} \quad (20)$$

et le potentiel

$$V(r) = \sum_n V(r - r_n), \quad (21)$$

avec

$$V(r) = -\frac{8}{|r|} + 2\int \frac{d(r_1)}{|r - r_1|}\,dr_1 + V_{\text{éch}}(r). \quad (22)$$

Dans le calcul du potentiel en un point d'une cellule, on pourra négliger dans la somme (21) la contribution des termes provenant d'autres cellules, puisque ce sont les potentiels coulombiens de charges négatives distribuées autour d'un noyau de charge opposée et égale en valeur absolue.

On aura donc :

$$V(r) = V(r) = -\frac{8}{r} + 8\pi\left\{\frac{1}{r}\int_0^r d(r)r^2\,dr + \int_r^R d(r)r\,dr\right\} - 6\left\{\frac{3}{8\pi}d(r)\right\}^{\frac{1}{3}}, \quad (23)$$

R étant le rayon de la cellule atomique, tel que

$$\Omega = \frac{4\pi}{3}R^3. \quad (24)$$

Pour la fonction u_s des états de cœur, on pourra prendre soit la fonction (1 s) calculée par Hartree pour Be^{++}, soit plus simplement la fonction approchée

$$u_1 = e^{-\alpha r}, \quad \text{avec} \quad \alpha = 3{,}66. \quad (25)$$

Si l'on enlève à (23) son dernier terme $V(r)$ représentera le potentiel d'une cellule neutre constituée par le noyau, les électrons de cœur et de valence. Ce potentiel, calculé par notre méthode, est pratiquement égal au potentiel calculé par Herring et Hill [5], avec l'ion central de Hartree et deux électrons de valence, l'un dans un état s, l'autre dans un état p, déterminés par la méthode de Wigner-Seitz.

4. **Deuxième méthode : ondes planes orthogonalisées avec un paramètre variationnel.** — Il est possible de choisir une fonction w'_k satisfaisant aux conditions (14) et (16) en posant :

$$w'_k = w_k - \lambda u_t, \quad (26)$$

u_t étant nul aux limites de la cellule et tel que

$$\int_\Omega u_t u_s^*\,dr = 0. \quad (27)$$

Pour $u_s = e^{-ar}$, on pourra prendre

$$u_t = e^{-\alpha r}\left(1 - \frac{2\alpha r}{3}\right). \quad (28)$$

Le paramètre λ sera défini par la condition que l'énergie de cohésion du métal soit maxima. Nous savons, en effet, que cette condition nous rapproche des véritables solutions de (4) ou (4').

Énergie de cohésion. — Par définition, l'énergie de cohésion par atome est

$$\mathcal{E}_{\text{coh}} = \mathcal{E}(\text{Be}) - \frac{\mathcal{E}}{N}, \qquad (29)$$

$\mathcal{E}$(Be) étant l'énergie de l'atome neutre libre et $\mathcal{E}$ l'énergie électronique du métal pour N atomes. En supposant que la fonction de cœur ψ_s est la même dans les trois états Be, Be^{++} gazeux et Be métal, on peut montrer, d'après la théorie des solides, que celle-ci peut s'exprimer sous la forme :

$$\mathcal{E}_{\text{coh}} = \mathcal{E}(\text{Be}) - \mathcal{E}(\text{Be}^{++}) - 2(E_0 + E_F - \overline{E_G} + E_H), \qquad (30)$$

où $\mathcal{E}(\text{Be}^{++})$ est l'énergie de l'atome de Be deux fois ionisé;

$$E_k = \frac{\int \Psi_k H_{\text{val}} \Psi_k}{\int \Psi_k^* \Psi_k}, \qquad (31)$$

E_0 est la valeur de E_k [éq. (4)] pour $k = 0$;
E_F est la valeur moyenne de $E_k - E_0$.

$$E_G = \frac{1}{4} \int_\Omega d_{\text{val}} (V_{\text{val}} + V_{\text{éch}})\, dr$$

représente l'énergie coulombienne d'un électron de valence dans la distribution due aux autres électrons de valence corrigée par l'échange.

$$E_H = \frac{1}{2} \int |\psi_s|^2 (V_{\text{éch}} - V'_{\text{éch}})$$

est un terme correctif qui représente l'« énergie d'échange » entre électrons de cœur et de valence : $V_{\text{éch}}$ = potentiel d'échange pour Be métal; $V'_{\text{éch}}$ = potentiel d'échange pour Be^{++}.

Avec

$$\psi_s = \sqrt{\frac{\alpha^3}{\pi}}\, e^{-\alpha r}$$

et le potentiel (22), les différentes contributions au dernier terme de (30) peuvent être calculées mathématiquement. On trouve ainsi

$$E_0 + E_F - E_G + E_H$$

minimum et égal à 1,0381 pour

$$\lambda = -1,84.$$

$\varepsilon(\text{Be}) - \varepsilon(\text{Be}^{++})$ relatif à l'atome libre ne dépend pas de λ et l'on peut prendre la valeur calculée par Hartree avec échange :

$$\varepsilon(\text{Be}) - \varepsilon(\text{Be}^{++}) = -2 \times 0,952.$$

D'où

$$\mathcal{E}_{\text{coh}} = 2[1,0381 - 0,952] = 0,1722 \text{ u R.}$$

Pour obtenir l'énergie de cohésion véritable, on doit y ajouter la différence des énergies de corrélation entre Be métal et Be gazeux. Cette correction tient compte de l'approximation introduite en prenant la fonction d'onde totale sous la forme d'un déterminant de Slater. Avec la valeur proposée par Donovan et Seitz [7], soit

$$2(0,0825 - 0,05) = 0,065,$$

on a une énergie de cohésion de

$$0,1722 + 0,065 = 0,2372 \text{ u. R.} = 74 \text{ kcal/mol.-g}$$

en excellent accord avec la valeur expérimentale 75 kcal/mol.-g.

On trouve pour le rapport de la densité des électrons de valence aux électrons de cœur au voisinage du noyau :

$$\frac{d_{\text{val}}}{d_c} = \frac{1}{|\psi_{1s}(0)|^2} \frac{\sum_k |w_k^1(0)|^2}{\sum_k \int_\Omega |w_k^1(r)|^2\, dr} = \frac{0,383}{17,1} = 0,0224. \qquad (32)$$

Pour le Be libre, on a d'après Hartree [3], en prenant la fonction ψ_{2s} de valence orthogonalisée à la fonction de cœur ψ_{1s}, la densité totale étant

$$\mathcal{D}(\text{Be}) = 2\{|\psi_{1s}|^2 + |\psi_{2s}|^2\},$$

$$\frac{d_{\text{val}}}{d_c} = \frac{|\psi_{2s}(0)|^2}{|\psi_{1s}(0)|^2} = \frac{0,563}{17,1} = 0,033, \qquad (33)$$

d'où une diminution relative de la densité, et une augmentation relative de la période de

$$0,033 - 0,0224 = 0,0106 = 1,06 \text{ pour } 100$$

quand on passe du gaz au métal.

5. **Troisième méthode : Résolution directe de l'équation d'onde.** — L'équation d'onde cellulaire (4′) avec la condition aux limites (14) peut être résolue par un développement en harmoniques sphériques, suivant une méthode proposée par Slater [8] :

$$w_k(r) = a_0 \sum_l (2l+1)\, i^l P_l(\cos\theta)\, j_l(kr_1) \frac{u_l(E;\, r)}{u_l(E;\, r_1)}, \qquad (34)$$

$u_l(E;\, r)$ étant solution de

$$\left\{\frac{d^2}{dr^2} - V(r) - \frac{l(l+1)}{r^2} + E\right\}(r u_l) = 0. \qquad (35)$$

Pour $r = r_1$, rayon de la sphère atomique, on a bien

$$w_k(r_1) = a_0 \sum_l (2l+1)\, i^l P_l(\cos\theta)\, j_l(kr_1) = a_0\, e^{ik.r_1} \qquad (36)$$

et (4′) résulte de (34) et (35).

Pour résoudre (35), nous prendrons pour $V(r)$

$$\left.\begin{aligned} -V(r) &= \frac{7,75}{r} - 6,617 \quad \text{pour } 0 < r < 0,75, \\ -V(r) &= \frac{3,02}{r^2} - \frac{1,273}{r} + 0,963 \\ &\quad \text{pour } 0,75 < r < r_1 \end{aligned}\right\} \qquad (37)$$

Le potentiel représenté par cette expression est peu différent du potentiel (23), l'écart maximum étant de 5 pour 100, mais il a l'avantage de permettre une expression mathématique de la solution de (35).

La solution régulière à l'origine sera :

Pour $0 < r < 0,75$:

$$ru_l = M_{il} = r^{l+1} e^{-\frac{z_i}{2}} F(l+1-k_i;\ 2l+2;\ z_i), \quad (38)$$

avec

$$z_i = 2\sqrt{-E+6,617}.r,$$
$$k_i = \frac{7,75}{2\sqrt{-E+6,617}}$$

et pour $0,75 < r < r_1$:

$$ru_l = U_{el} = \frac{1}{2i}\left\{\begin{array}{l}\frac{M_{el}(r)}{M_{el}(r_0)}\left(\frac{M_{el}^{\star\prime}}{M_{el}^{\star}} - \frac{M'_{il}}{M_{il}}\right)_{r_0} \\ -\frac{M_{el}^{\star}(r)}{M_{el}^{\star}(r_0)}\left(\frac{M'_{el}}{M_{el}} - \frac{M'_{il}}{M_{il}}\right)_{r_0}\end{array}\right\}, \quad (39)$$

avec

$$M_{el} = r^{\frac{1}{2}+m_e} e^{-\frac{z_e}{2}} F\left(\frac{1}{2}+m_e-k_e;\ 2m_e+1;\ z_e\right),$$
$$m_e = \sqrt{\left(l+\frac{1}{2}\right)^2 - 3,02},$$
$$z_e = 2\sqrt{-(E+0,963)}\,r,$$
$$k_e = -\frac{1,273}{2\sqrt{-(E+0,963)}}$$

et la notation

$$M'_{el} = \frac{dM_{el}}{dr},$$
$$F(\alpha;\ \gamma;\ z) = 1 + \frac{\alpha}{\gamma}z + \frac{\alpha(\alpha+1)}{\gamma(\gamma+1)}\frac{z^2}{2!} + \ldots :$$

fonction hypergéométrique.

Pour $l = 0$ et 1, m_e est imaginaire et M_{el} et $M_{el}^{\star}$ sont les solutions indépendantes.

Pour $l \geqq 2$, m_e est réel et il faudra prendre pour solution indépendante $M_{el}(-m_e)$ à la place de $M_{el}^{\star}$.

Dans (39), les coefficients de $M_{el}(r)$ et $M_{el}^{\star}(r)$ ont été choisis de façon à assurer la continuité de la dérivée logarithmique de la solution pour $r = r_0 = 0,75$:

$$\left(\frac{U'_{el}}{U_{el}}\right)_{r_0} = \left(\frac{M'_l}{M_l}\right)_{r_0}. \quad (40)$$

Dans (34), E doit être considéré comme fonction de $k = |k|$ suivant la relation (31) :

$$E(k) = E_k = \frac{\int \Psi_k^{\star} H_{\text{val}} \Psi_k}{\int \Psi_k^{\star} \Psi_k}.$$

Celle-ci donne :

$$\omega(E-\varepsilon_k) = \sum_l 4\pi r_1^2 (2l+1) j_l^2(kr_1) \left[\frac{u'_l(E;\ r)}{u_l(E;\ r)}\right]_{r_1}, \quad (41)$$

où ω est le volume de la partie de la cellule atomique située en dehors de la sphère atomique, c'est-à-dire la région où le potentiel est constant et la fonction de valence w_k est une onde plane. ε_k est l'énergie propre de cette onde plane dans cette région.

Le deuxième membre provient dans (41) de la discontinuité de la dérivée de w_k à la surface de la sphère atomique.

r_1, rayon de la sphère atomique, pourra être pris égal à la demi-distance entre les noyaux les plus proches, soit pour le Be

$$r_1 = 2,14 \text{ u. a.}$$

Le facteur de normalisation a_0 dépend aussi de k. Saffren a montré [8] qu'il était donné par

$$|a_0|^2\left(-\frac{\partial f_k}{\partial E} + \omega\right) = 1, \quad (42)$$

f_k étant le deuxième membre de (41).

Nous avons donc calculé pour différentes valeurs de E et de l, $u_l(E;\ r_1)$ et $u'_l(E;\ r_1)$ et déterminé $E(k)$ et $a_0(k)$ par les relations (41) et (42). Pour les énergies, les résultats sont voisins de ceux obtenus par la méthode précédente ainsi que des valeurs expérimentales.

Dans la fonction d'onde (34), seuls les états $l = 0$ contribuent à la densité près du noyau :

$$w_k(0) = a_0\, j_0(kr_1) \frac{u_0(E;\ 0)}{u_0(E;\ r_1)} \quad (43)$$

et

$$d_{\text{val}} = \sum_k |w_k(0)|^2 = \frac{\int_0^K |w_k(0)|^2 k^2\, dk}{\int_0^K k^2\, dk}, \quad (44)$$

avec

$$K = \left(\frac{3\pi}{2}\right)^{\frac{1}{3}} \frac{1}{R} = 1,03, \quad (45)$$

ce qui donne, après avoir effectué les calculs :

$$d_{\text{val}} = 1,24 \quad \text{(pour un électron)}.$$

Si l'on suppose que la fonction d'onde ψ_s est solution de la même équation d'onde (35) avec $l = 0$, il en résultera l'orthogonalité entre w_k et ψ_s.

En prenant pour d_c la même valeur que précédemment, on aura

$$\frac{d_{\text{val}}}{d_c} = \frac{1,24}{17,1} = 0,0725$$

et une diminution relative de la densité de

$$0,033 - 0,0295 = 0,0035 = 3,5 \text{ pour } 1000$$

quand on passe du gaz au métal.

6. **Discussion et conclusion**. — La différence entre les résultats donnés par la deuxième et la troisième méthode peut s'expliquer de la façon

suivante : les énergies, étant données par des intégrales de la forme (31), sont peu sensibles à une variation des Ψ_k dans la région située près du noyau. D'autre part, en raison de la faible latitude permise par l'introduction d'un seul paramètre λ, la minimisation des énergies E_k se traduit par une amélioration des fonctions d'onde Ψ_k dans les régions extérieure et médiane de la cellule atomique au détriment de la région centrale. Il est donc nécessaire de revenir à la résolution directe des équations d'onde qui nous donne des résultats plus exacts pour les fonctions d'onde dans cette région. Il semble donc que nous avons une légère diminution de la densité par rapport au gaz. L'influence de l'état métallique sur la densité électronique résulte de deux facteurs : le facteur densité moyenne qui doublerait à peu près la densité au noyau, le volume moyen occupé par un éléctron étant deux fois plus faible, et le facteur « état métallique », d'après lequel les électrons, notamment les plus énergétiques, ont tendance à s'étendre dans tout le volume du métal, ce qui diminue d'autant la densité au centre.

Il nous restera à discuter la valeur des approximations faites. Une étude complémentaire est actuellement en cours pour voir si certaines de ces approximations seraient non négligeables et éventuellement pour en tenir compte dans l'évaluation de la variation de la densité totale.

Annexe. — La figure 1 donne E_k et $w_K(0)$ en fonction de k calculés par la troisième méthode. On a, pour $k = 0$

$$\left(\frac{\partial E}{\partial k^2}\right)_0 = 0,65,$$

valeur voisine de celle trouvée par d'autres auteurs [5] et [7].

Pour l'énergie de cohésion, nous aurons

$$\mathcal{E}_{\text{coh}} = \mathcal{E}(\text{Be}) - \mathcal{E}(\text{Be}^{++}) - 2[E_0 + E_F - E_G] + \Delta E_{\text{corr}}$$
$$= 0,145 \text{ u. R} = 45,2 \text{ kcal/mol},$$

avec

$$E_F = 0,608,$$

calculé d'après la figure 1;

$$E_G = \frac{1,2}{R} = 0,511,$$

valeur correspondant à une densité constante;

ΔE_{corr} et $\mathbf{E}(\text{Be}) - \mathbf{E}(\text{Be}^{++})$ ont les mêmes valeurs qu'au paragraphe 4.

Les approximations faites en prenant pour E_G la valeur $\frac{1,2}{R}$ et en négligeant E_M étant faibles et de signes contraires sont négligeables.

L'écart avec la valeur expérimentale, soit

$$75 - 45,2 = 29,8 \text{ kcal/g} = 0,095 \text{ u. R}$$

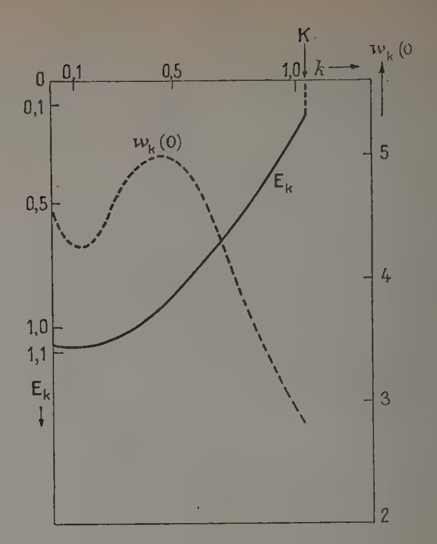


Fig. 1.
Variation en fonction de k.
——— de E (échelle de gauche);
- - - - de $w_K(0)$ (échelle de droite).

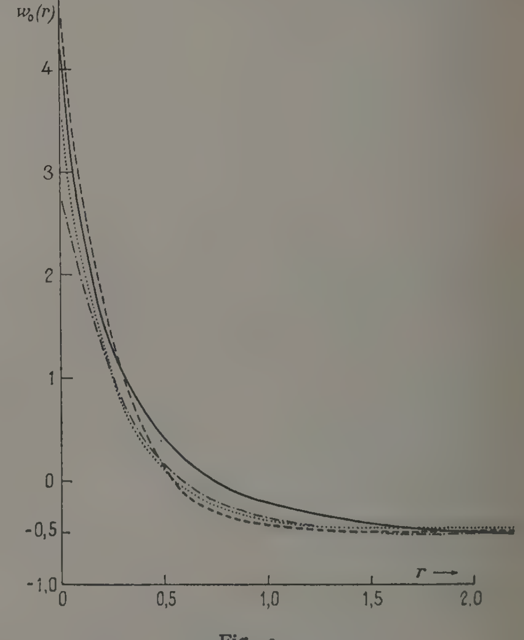


Fig. 2.
Comparaison des fonctions $w_0(r)$.
——— Herring-Hill
.... 1re méthode
-.-.-.- 2e »
— — — 3e »

correspond à un écart de l'ordre de 0,05 u.R par électron qui est de l'ordre de grandeur de la correction que l'on peut attendre pour E_F en faisant

intervenir les termes complémentaires de développement (15) dans la détermination des E_k.

$E_K - E_0 = 0{,}96$ u.R $= 12{,}85$ eV est à comparer à la largeur de la bande de rayons X, 14,8 eV.

$E_K = 0{,}13$ u.R $= 1{,}76$ eV est à comparer avec l'énergie d'extraction 3,9 eV, la différence pouvant provenir en partie de l'énergie de corrélation, en partie d'un effet de polarisation de la surface.

Les résultats obtenus par cette méthode sont donc cohérents avec les résultats expérimentaux, au moins en ce qui concerne les énergies. Il serait souhaitable de comparer des valeurs qui dépendent plus directement de la forme de la fonction d'onde telles que susceptibilité diamagnétique, forme du spectre de rayons X, etc.

La figure 2 donne les fonctions $w_0(r)$ pour $k = 0$, calculées par les deuxième et troisième méthodes comparées avec celle donnée par Herring et Hill [5] avec la méthode des ondes planes orthogonalisées. La forme de $w_k(r)$ dépend dans une certaine mesure du choix du potentiel (23), (37).

On pourrait calculer les fonctions de valence de l'atome libre en utilisant un potentiel analogue Mais l'approximation (7) pour Vech semble bien meilleure pour le métal que l'atome libre. D'autre part la dépendance des fonctions d'onde avec le potentiel semble beaucoup moins forte pour le métal, leur comportement pour les grands r étant fixé par les conditions aux limites.

Nous n'avons pas tenu compte de la polarisation des électrons de cœur due au changement d'état des électrons de valence. Celle-ci est sans doute faible puisque, entre l'atome neutre et l'atome deux fois ionisé, nous avons d'après Hartree [3]

$$\frac{d_c(0)\,\mathrm{Be}}{d_c(0)\,\mathrm{Be}^{++}} = \frac{1{,}852}{1{,}858} = (1 - 0{,}0032).$$

Intervention de M. Daudel. — La Communication de M. Jacques montre bien comment une fonction d'onde peut être bonne dans la majorité de l'espace donc énergétiquement convenable et mauvaise au voisinage du noyau. Une telle fonction peut donc conduire à de bons résultats pour certains cas de conversion interne et à de mauvaises valeurs pour la capture *e*.

Intervention de M. Rose. — Je suis d'accord.

BIBLIOGRAPHIE.

[1] Bouchez R., Daudel R. et P. et Muxart P. — *J. Physique Rad.*, 1947, **8**, 336.
[2] Segré E. et Wiegand C. — *Phys. Rev.*, 1949, **75**, 39 et **76**, 897.
[3] Hartree D. R. et Hartree W. — *Proc. Roy. Soc.*, **150** A, p. 9.
[4] Slater J. C.— *Phys. Rev.*, 1951, **81**, 385.
[5] Herring C. et Hill A. G. — *Phys. Rev.*, 1940, **58**, 132.
[6] Parmenter R. H. — *Phys. Rev.*, 1952, **86**, 552.
[7] Donovan B. — *Phil. mag.*, 1952, **43**, 868.
[8] Slater J. C. — *Phys. Rev.*, 1953, **92**, 603; Saffren M. M. et Slater J. C. — *Phys. Rev.*, 1953, **92**, 1126.

EFFETS DES DÉSINTÉGRATIONS RADIOACTIVES SUR LES ÉLECTRONS DES COUCHES INTERNES DE L'ATOME

Par J. S. LEVINGER,
Louisiana State University, Baton Rouge, Louisiana (U. S. A.).

Summary. — The probability of emission of atomic electrons due to beta decay is proportional to $\frac{1}{Z^2}$ in accord with results of many workers. The value given for the emission probability due to alpha decay is smaller than that calculated by Migdal, or Schaeffer. The approximations are discussed.

1. **Introduction.** — Aux premiers temps de leur développement, la Physique atomique et la Physique nucléaire étaient considérées comme appartenant à des domaines distincts; aujourd'hui nous consacrons un colloque entier à la discussion de l'interdépendance entre les phénomènes atomiques et nucléaires dont l'étude dans ces dernières années, s'est révélée comme une source féconde d'informations tant des propriétés de l'atome que des propriétés du noyau : telle l'étude de la conversion interne ou de l'atténuation des corrélations angulaires des rayons γ. Ce sont là des effets importants qui peuvent être mesurés avec une bonne précision et qui dépendent de caractéristiques nucléaires telles que le changement de moment angulaire ou le moment magnétique du noyau. Les effets des désintégrations radioactives sur les électrons des couches internes dont je parlerai sont, je le crains, d'un intérêt moindre. Ce sont de petits effets, de l'ordre de $\frac{1}{Z^2}$, qui sont difficiles à mesurer et souvent obscurcis par d'autres phènomènes. De plus, ces petits effets, étudiés dans cet article se sont révélés insensibles aux propriétés nucléaires ou atomiques spécifiques.

Je me propose, dans cette Communication, de discuter les effets des désintégrations nucléaires radioactives (émission α ou β) sur les électrons des couches internes de l'atome. Je suggère d'appeler « ionisation interne » le phénomène d'émission d'électrons appartenant à l'atome qui subit la désintégration nucléaire. Un des buts, utile quoique mineur, de ce Colloque, serait de décider si cette terminologie est appropriée et, dans le cas contraire, d'en proposer une autre. (Notons que l'atome peut être excité et non ionisé comme lorsqu'une particule α ou β extérieure traverse l'atome. Je propose d'inclure cette « excitation interne » dans le nom d'ionisation interne.)

D'autres phénomènes nucléaires — tels que la capture K, l'émission de neutron, la fission, la capture de mésons — peuvent également provoquer l'arrachement d'électrons atomiques entourant le noyau. (Daudel [1] a également proposé le phénomène de « création d'électrons ».)

Ces divers types d'ionisation interne peuvent être calculés par des méthodes analogues à celles utilisées pour l'ionisation interne en émission α ou β. Toutefois je me limiterai ici à l'étude des effets de l'émission α et β et de plus à l'ionisation interne des électrons intérieurs (K et L) des atomes moyens et lourds, ce qui permet d'utiliser les fonctions d'onde coulombiennes non relativistes des électrons pour une première approximation.

Des calculs d'ionisation interne ont été faits indépendamment il y a 13 ans par Feinberg [2] et Migdal [3]. Plus récemment, des calculs par moi-même [4], Schwartz [5], Primakoff et Porter [6], Serber et Snyder [7] et Winther [8] ont montré l'intérêt accru de ce problème. Tous ces auteurs ont calculé l'ionisation interne en émission β, Migdal et moi-même avons également calculé l'ionisation interne en émission α. En émission β, les différents calculs sont en accord, en accord également avec les expériences faites. En émission α, les deux calculs ne concordent pas, non plus qu'avec l'expérience. Je n'entreprendrai pas ici une comparaison détaillée avec les résultats expérimentaux. J'espère que ceci pourra être fait ultérieurement au cours du Colloque.

Au paragraphe suivant, j'exposerai le formalisme de la théorie des perturbations dépendant du temps pour ce problème et montrerai quelle forme particulière il prend dans les deux cas limites de perturbation brusque et de perturbation adiabatique. Les calculs de perturbation brusque (émission β) sont traités dans le troisième paragraphe, et les calculs de perturbation adiabatique (pour les électrons intérieurs en émission α) sont traités dans le dernier paragraphe. J'estimerai l'ordre de grandeur des erreurs que l'on commet en se limitant aux perturbations du premier ordre, en traitant les émissions α et β comme des processus limites et par

l'emploi de fonctions d'onde coulombiennes non relativistes. Je résumerai rapidement le contenu de mon article précédent [4], et j'insisterai sur les corrections apportées à ce travail. Vous constaterez que les calculs ne sont pas encore complètement satisfaisants. En fait, je crois que l'intérêt essentiel de l'ionisation interne est que de nombreuses erreurs (certaines très importantes) ont été faites tant dans les calculs que dans les expériences dans ce domaine. J'y ai pour ma part certainement contribué quelque peu [4], [9]. L'ionisation interne offre également l'intérêt d'un exercice sur la théorie des perturbations où les deux limites brusque et adiabatique sont toutes deux importantes.

2. Théorie d'une perturbation qui dépend du temps. — Si l'hamiltonien H est une fonction du temps, l'équation de Schrödinger peut être écrite à l'aide des dérivées par rapport au temps des amplitudes $a_{n'}$ des différentes fonctions propres [*cf.* [10] et I, éq. (36)].

$$\dot{a}_{n'} = \sum_n \frac{a_n}{\hbar\omega_{n'n}} \left[\exp\left(i \int_0^t \omega_{n'n}(t')\, dt' \right) \right] \left(\frac{dH}{dt} \right)_{n'n}. \quad (1)$$

Dans une théorie de perturbation au premier ordre, nous supposons que l'amplitude a_n est l'unité pour l'état fondamental (désigné par o) et zéro pour les états excités, à chaque instant, et que la perturbation commence à l'instant zéro. La différence d'énergie $\hbar\omega_{n'n} = \hbar\omega$ est supposée indépendante du temps. Les fonctions d'onde $u_n(t)$ et $u_{n'}(t)$ utilisées pour évaluer l'expression $\left(\frac{dH}{dt}\right)_{n'n}$ sont aussi supposées indépendantes du temps. Avec ces approximations on a [*cf.* I, éq. (37)] :

$$a_{n'} = (\hbar\omega)^{-1} \int_0^\infty e^{i\omega t} \left(\frac{dH}{dt} \right)_{0n'} dt. \quad (2)$$

Puisque nous nous sommes limité à la théorie des perturbations au premier ordre, les résultats obtenus sont valables seulement pour de petites perturbations : notre approximation revient à négliger les termes de l'ordre de $\frac{1}{Z}$. (Notons que dans les limites extrêmes d'une perturbation adiabatique ou d'une perturbation brusque, l'amplitude $a_{n'}$ peut être calculée sans faire l'hypothèse que la perturbation est petite; mais le développement fait ici ne serait plus valable.)

L'approximation d'une perturbation brusque consiste à remplacer $\exp(i\omega t)$ par l'unité dans l'équation (2), comme nous pouvons le faire si $\frac{dH}{dt}$ est appréciable seulement pendant des temps petits comparés aux périodes atomiques, ω^{-1}. Nous obtenons alors une expression pour l'amplitude de l'état n' due à une perturbation brusque.

$$a_{n'} = (\hbar\omega)^{-1} (\Delta H)_{0n'}. \quad (3)$$

Cette expression semble différente du développement habituel de la fonction d'onde initiale à l'aide de la fonction d'onde finale, mais elle peut être exprimée de la façon usuelle. Soit, par exemple, l'émission β, dans laquelle le changement brusque de l'hamiltonien

$$\Delta H = \frac{e^2}{r} = H(Z) - H(Z+1).$$

Nous désignerons par $u(r)$ la fonction d'onde de l'électron que nous considérons et par v la fonction d'onde de l'ensemble des autres électrons de l'atome.

Puisque les fonctions d'onde u_0 et u'_n sont supposées indépendantes du temps, nous pouvons prendre pour la première $u_0(Z, r)$ correspondant à une charge nucléaire Z, et pour la deuxième $u'_n(Z+1, r)$ correspondant à la charge du noyau final. Dans notre approximation, v ne change pas, puisque tous les autres électrons sont supposés rester dans l'état fondamental, si bien que l'intégration sur les coordonnées de tous les autres électrons donne l'unité. Nous récrirons alors l'équation (3)

$$\begin{aligned} a'_n &= (\hbar\omega)^{-1} \int u'_n(Z+1, r) \\ &\quad \times [H(Z) - H(Z+1)]\, u_0(Z, r)\, d^3 r \\ &= \int u'_n(Z+1, r)\, u_0(Z, r)\, d^3 r. \end{aligned} \quad (4)$$

L'expression finale pour une perturbation brusque s'appliquera, comme il a été dit ci-dessus, même la perturbation n'est pas petite.

Nous avons exposé en quelques détails cette démonstration assez classique [11], car précédemment (*cf.* [4], note 27) certaine confusion s'était introduite concernant la valeur de la différence d'énergie $\hbar\omega$.

Dans cette approximation, il ne faudrait pas inclure une estimation de l'ionisation interne par le processus suggéré parfois « de conversion interne du rayonnement de freinage interne ». Le processus d'interaction de la particule β avec un électron K par le champ électromagnétique est *déjà* compris dans le calcul de perturbation brusque donné ci-dessus.

L'approximation adiabatique, nécessaire dans le cas de l'émission α, a été étudiée dans mon précédent article (*cf.* [4], éq. (37)). Nous effectuons un développement semi-convergent en puissance de la vitesse de la particule α par intégrations successives par parties de l'équation (2)

$$a_{n'} = (\hbar\omega)^{-1} \left\{ \left[(i\omega)^{-1} e^{i\omega t} \frac{dH}{dt} \right]_0^\infty - \left[(i\omega)^{-2} e^{i\omega t} \frac{d^2 H}{dt^2} \right]_0^\infty + \ldots \right\} \quad (5)$$

Comme il a été discuté dans I, le premier terme du développement est le terme dipolaire calculé par Migdal [4] avec cette différence que notre résultat

donne une réduction d'un ordre de grandeur de ce terme due au recul nucléaire. Le deuxième terme ou terme quadripolaire a été calculé dans [4], mais dans cette Communication je désire corriger certaines erreurs de calcul faites dans mes précédents calculs.

3. **Calculs pour l'émission** β. — Puisque la plupart des particules β (positrons ou électrons) sont émises avec une vitesse grande devant celle des électrons périphériques, l'ionisation interne en émission β peut être traitée comme une perturbation brusque. Nous insistons sur le fait que l'approximation d'une perturbation brusque implique l'existence d'une source illimitée d'énergie pour l'ionisation des électrons atomiques. Si une quantité limitée d'énergie est libérée par l'émission β, alors l'approximation brusque ne s'applique plus strictement [12]. En réalité, l'énergie utilisée pour ioniser l'électron atomique diminue l'énergie que se partagent la particule β et le neutrino, diminuant ainsi le volume disponible dans l'espace des phases pour l'électron et le neutrino, et rendant ainsi moins probable le processus d'ionisation interne. En première approximation, les résultats d'un calcul de perturbation brusque devraient être réduits par un facteur donné par :

$$S = \frac{f(Z,\, W_0 - \hbar\omega)}{f(Z,\, W_0)}, \tag{6}$$

f est ici la fonction utilisée dans le calcul des valeurs de ft pour l'émission β; W_0 est l'énergie libérée par l'émission β; tandis que $\hbar\omega$ est l'énergie donnée à l'électron éjecté. Puisque f varie rapidement avec l'énergie, ce facteur réduit de façon appréciable le nombre d'ionisations internes vers une énergie positive élevée et réduit aussi la probabilité totale d'ionisation interne.

Le facteur S n'a pas été inclus dans mon précédent travail. Un facteur analogue a été inclus par Primakoff et Porter [6] pour l'ionisation interne par capture-K et l'emploi de ce facteur a été indiqué par eux pour le cas de l'émission β.

Le calcul d'ionisation interne des électrons K par un changement brusque de la charge du noyau a été fait par plusieurs auteurs [2], [3], [4], [5], [6] en utilisant des fonctions d'onde coulombiennes non relativistes. Leurs résultats concordent pour la forme du spectre des électrons éjectés ([4], éq. (14))

$$P(n')\,\mathrm{d}W = 2^6 Z^{-4}(1 - e^{-2\pi n'})^{-1} \times n'^8(n'^2+1)^{-4}\exp(-4n'\cot g^{-1} n')\,\mathrm{d}W \tag{7}$$

et aussi pour la probabilité d'ionisation interne par électron K

$$P = \int_0^\infty P(n')\,\mathrm{d}W = \frac{0{,}326}{Z^2} \tag{8}$$

ou $\frac{0{,}65}{Z^2}$ pour la couche K.

Ici

$$n' = \left(\frac{E_k}{W}\right)^{\frac{1}{2}}, \tag{9}$$

où W est l'énergie cinétique de l'électron éjecté et E_k est l'énergie de liaison de l'électron K. La probabilité d'excitation d'un électron K vers des niveaux discrets peut aussi être calculée à cette approximation en utilisant les équations (3) ou (4) (*voir* les résultats pour des fonctions d'onde coulombiennes dans I). La majorité de l'excitation se fait vers le niveau $2s$; et la majorité du reste vers le niveau $3s$. Pour des atomes où les niveaux $2s$ et $3s$ sont déjà occupés, l'excitation des électrons K est négligeable comparée à l'ionisation.

Dans mon travail précédent, j'ai vérifié ces résultats pour l'ionisation et l'excitation interne des électrons par des calculs numériques de l'énergie moyenne libérée par émission β. Mes résultats numériques de 1,998 Ry sont en accord avec le calcul de Serber et Snyder [7] qui donne 2Ry.

Le spectre et la probabilité d'ionisation pour les électrons L a été calculé par trois auteurs [3], [4], [5] et ceux pour les électrons M par deux auteurs [3], [5]. Les différents résultats pour les électrons L sont comparés dans le tableau I de mon article précédent [4]. Schwartz et moi-même trouvent une probabilité d'ionisation de $\frac{2{,}1}{Z^2}$ pour la couche L, tandis que Migdal trouve une probabilité d'ionisation plus grande.

Remarquons qu'à cette approximation où l'on néglige $\frac{1}{Z}$ la probabilité d'ionisation interne est la même pour les émissions β_+ et β_- [elle est réduite par un facteur d'environ 4, pour la capture e par l'effet d'écran et les effets de corrélation (6)]. L'emploi d'un Z effectif de Slater dans le calcul numérique des résultats devrait être une bonne approximation. De plus, comme il a été dit ci-dessus, le spectre et la probabilité d'ionisation interne sont réduits par le facteur S qui dépend de l'énergie disponible pour l'émission β.

Précédemment, j'ai calculé les corrections d'écran en écrivant la probabilité d'ionisation $1 - P_{\text{remain}} - P_{\text{excit}}$ où P_{remain} est la probabilité que l'électron reste dans son état initial. Les probabilités d'excitation étaient calculées en utilisant l'équation (3) avec des fonctions d'onde de Hartree pour Hg. Les résultats ne sont pas corrects puisqu'on a pris une mauvaise valeur pour l'énergie au dénominateur. Depuis, j'ai calculé les probabilités d'excitation pour l'émission β_+ de A en utilisant des fonctions d'onde de Hartree-Fock pour A et Cl^- dans l'équation (4). Des intégrations numériques très précises ont été nécessaires puisque les fonctions d'onde sont presque orthogonales. Des calculs numériques en utilisant les fonctions d'ondes atomiques du continu sont encore à faire.

Puisque le changement brusque de la charge nucléaire est la cause principale d'ionisation interne, la probabilité d'ionisation interne est indépendante du degré d'interdiction de l'émission β, et de la forme de l'interaction β. Plusieurs études expérimentales récentes sur les rayonnements caractéristiques *X-K* excités dans l'émission β sont en accord satisfaisant avec ces calculs. Je n'ai trouvé aucune expérience sur l'ionisation interne des électrons *L* en émission β.

4. **Calculs pour l'émission α.** — On peut traiter l'ionisation interne sur les électrons extérieurs du cortège dans l'émission α par la méthode de perturbation brusque car la vitesse des particules α est nettement plus grande que la vitesse moyenne des électrons (environ 1/20e fois la vitesse de la lumière par rapport à environ 1/137e fois la vitesse de lumière). L'ionisation interne due à la variation brusque de la charge nucléaire est quatre fois celle qui se produit dans le cas de l'émission β, car la variation de la charge nucléaire intervient au carré. De plus, il y aura une ionisation interne supplémentaire, appréciable, due au recul de l'atome, qui pourrait être calculée par les méthodes décrites dans cet article (comme il a été montré dans [4] le faible recul en émission β donne un effet négligeable dans ce problème). Toutefois pour les électrons les plus internes le recul nucléaire diminue grandement la probabilité d'ionisation interne dans l'émission α.

Pour les électrons *K* de Po, la vitesse des particules α est environ 1/12e de celle des électrons, laquelle est égale $\frac{Zc}{137}$. Ceci permet une approximation adiabatique, en utilisant le développement semi-convergent de l'équation (5). Je prends pour l'hamiltonien $H(t)$ l'énergie cinétique de l'électron plus son énergie coulombienne dans le champ de la particule α se déplaçant dans une direction, et dans le champ du noyau résiduel en recul dans la direction opposée. (La particule α est suffisamment lourde pour être traitée comme une particule classique et notre résultat ne dépend pas du moment angulaire emporté par la particule α). En utilisant cette expression de l'hamiltonien, nous trouvons un terme dipolaire évalué à l'instant de l'émission α, égal à celui obtenu par Migdal [4], à part un facteur $\frac{A-2Z}{A-4}$. Ce calcul est exposé dans mon travail antérieur, où l'on obtient le même résultat par un calcul plus physique considérant la vitesse du centre de charge dans le système de la particule α et du noyau de recul (le facteur donné ci-dessus est égal au rapport de la vitesse du centre de charge à celle de la particule α). Ce facteur intervient au carré car nous portons au carré l'amplitude du terme dipolaire, si bien que nos probabilités d'ionisation interne sont inférieures à celles de Migdal d'un facteur

$$\frac{(A-2Z)^2}{(A-4)^2} = 0,04,$$

pour des valeurs numériques s'appliquant à ^{210}Po (toutes les valeurs numériques seront données pour ce noyau, car il semble que ce soit le meilleur cas pour l'étude expérimentale de l'ionisation interne en émission α).

Comme le terme dipolaire subit cette réduction particulière, j'ai poursuivi le développement de l'équation (5) et calculé l'amplitude du terme $\frac{d^2H}{dt^2}$, ou terme quadripolaire. Comme il a été montré dans [4] le terme quadripolaire n'est pas modifié par le recul nucléaire, à l'approximation de notre calcul. Pour des fonctions d'onde coulombiennes non relativistes, les éléments de matrice dipolaires ont été évalués par Migdal à l'aide des méthodes habituelles. Les éléments de matrice quadripolaires, de la forme $[r^{-3}P_2(\cos\theta)]_{0n}$, ont été évalués dans mon article précédent par une méthode d'intégration sur le contour, développée par H. A. Bethe. Mais j'ai fait dans cet article certaines erreurs de calcul. Je donne dans l'appendice les éléments de matrice quadripolaires corrigés. Les résultats numériques pour la probabilité d'ionisation de ^{210}Po sont donnés dans le tableau I.

TABLEAU I.

Ionisation interne de ^{210}P$_0$.

	Dipole.	Quadripole.	Somme.
Électron *K*	$\frac{0,00034}{Z^2}$	$\frac{0,000013}{Z^2}$	–
Couche *K*	–	–	$1,0.10^{-7}$
Électron L_I	$\frac{0,0011}{Z^2}$	$\frac{0,00009}{Z^2}$	–
» L_{II}	$\frac{0,0007}{Z^2}$	$\frac{0,031}{Z^2}$	–
» L_{III}	$\frac{0,0007}{Z^2}$	$\frac{0,063}{Z^2}$	–
Couches *L*	–	–	$0,50.10^{-4}$

Ces résultats numériques montrent que pour les électrons *K* et L_1, le terme quadripolaire est négligeable, bien que, le terme dipolaire soit nettement réduit par le recul nucléaire. Mais pour les électrons L_{II} et L_{III} le terme quadripolaire $2p - n'p$ prédomine et contient presque toute l'ionisation interne dans la couche *L* (le terme $2p - n'f$ est très faible).

Mes résultats à la fois pour les couches *K* et *L* sont d'un ordre de grandeur inférieur aux valeurs obtenues à partir des rendements expérimentaux des rayons X caractéristiques émis par Po [14]. Il est possible que les rendements expérimentaux soient dus en grande partie à la conversion interne de raies nucléaires, toutefois la divergence nous

suggère d'examiner les calculs plus précis qui pourraient augmenter la probabilité calculée d'ionisation interne.

Pour les électrons K, les corrections d'écran sont estimées dans [4] comme donnant une augmentation de 40 pour 100 de la probabilité d'ionisation. On peut s'attendre à ce que les corrections relativistes produisent une augmentation appréciable.

Pour les électrons L, les effets relativistes seraient petits. Toutefois la probabilité d'ionisation donnée dans le tableau I est augmentée par deux effets : les corrections d'écran et l'utilisation de termes supplémentaires dans le développement semi-convergent de l'équation (5). Dans mon article précédent, je supposais que les corrections d'écran seraient grandes. Toutefois les calculs numériques utilisant les fonctions d'onde atomiques non relativistes de Ramberg [15], et les fonctions d'onde atomiques relativistes de Reitz [16], montrent que les corrections d'écran ne sont pas grandes. Comme il est montré dans le tableau I, les transitions sont presque toutes entre les états $2p$ et $n'p$, si bien que seulement les termes correspondants doivent être corrigés de l'effet écran. Les corrections d'écran sont seulement d'environ 10 pour 100 pour $Z = 80$ et deux énergies positives de 2 et 25 keV. Sans attendre de nouveaux calculs numériques, il semble clair que les corrections d'écran ne peuvent rendre compte pour une part appréciable de la grande différence entre les rendements calculés et expérimentaux des rayons X L émis par Po.

Il est à présent difficile d'estimer la précision du développement semi-convergent de l'équation (5) appliqué à l'ionisation interne sur les électrons L en émission α. Dans mon article précédent, je supposais que la précision pourrait être assez faible et que les termes supérieurs des séries augmenteraient probablement la probabilité d'ionisation interne. Nous pouvons *estimer* une limite supérieure de la probabilité d'ionisation interne en utilisant le résultat pour la variation brusque de deux unités de la charge nucléaire (il faut prendre seulement cela comme un ordre de grandeur estimé, ce ne peut être même pas la vraie limite supérieure). Pour les six électrons $2p$, la variation brusque de charge donne une probabilité d'ionisation de $\frac{5}{Z^2} = 8.10^{-4}$ (*voir* tableau I de mon article précédent). Cette limite supérieure approchée est 16 fois la somme des transitions dipolaire et quadripolaire du tableau I et est fortuitement en bon accord avec la probabilité d'ionisation déduite des rendements expérimentaux des rayons X L.

Nous croyons que nos calculs de l'ionisation interne en émission α sont en général corrects. Toutefois des corrections relativistes sont nécessaires pour les électrons K; et des calculs numériques sont nécessaires pour les électrons L afin de remplacer l'approximation adiabatique, qui apparaît insuffisante.

Appendice. — Les éléments de matrice quadripolaires pour des fonctions d'onde coulombiennes non relativistes ont été calculées dans [4] par une méthode d'intégration sur le contour. Les résultats pour les transitions $2s—n'd$ et $2p—n'f$ ont été corrigés par J. Scandrett et D. C. Kent tandis que les résultats pour les transitions $1s—n'd$ et $2p—n'p$ étaient contrôlés. Les résultats sont donnés ci-dessous.

$$\left.\begin{aligned}&(r^{-3})_{1s,n'd}\\&= -\frac{1}{3}Z^2(n'^2+1)^{\frac{1}{2}}(n'^2+4)^{-\frac{1}{2}}(1-e^{-2\pi n'})^{-\frac{1}{2}}\\&\qquad[1-9\exp(-2n'\operatorname{cotg}^{-1}n')];\end{aligned}\right\}\quad(1\,\mathrm{A})$$

$$\left.\begin{aligned}&(r^{-3})_{2s,n'd}\\&= \left(\frac{Z^2}{24}\right)2^{-\frac{1}{2}}(n'^2+1)^{-\frac{1}{2}}(n'^2+4)^{-\frac{1}{2}}(1-e^{-2\pi n'})^{-\frac{1}{2}}\\&\qquad[A(n')+B(n')];\end{aligned}\right\}\quad(2\,\mathrm{A})$$

$$A(n') = n'^2+4,$$

$$B(n') = -(45n'^6+396n'^4+1008n'^2+576)(n'^2+4)^{-2}\times\exp\left(-2n'\operatorname{cotg}^{-1}\frac{n'}{2}\right);$$

$$\left.\begin{aligned}&(r^{-3})_{2p,n'p}\\&= \left(\frac{Z^2}{4}\right)6^{-\frac{1}{2}}(n')^{-1}(1+n'^2)^{-\frac{1}{2}}(1-e^{2\pi n'})^{-\frac{1}{2}}\\&\qquad\left[1+3\exp\left(-2n'\operatorname{cotg}^{-1}\frac{n'}{2}\right)\right];\end{aligned}\right\}\quad(3\mathrm{A})$$

$$\left.\begin{aligned}&(r^{-3})_{2p,n'f}\\&= \left(\frac{Z^2}{6}\right)6^{-\frac{1}{2}}(n')^{-1}(1+n'^2)^{-\frac{1}{2}}(4+n'^2)^{-\frac{1}{2}}(9+n'^2)^{-\frac{1}{2}}\\&\qquad(1-e^{-2\pi n'})^{-\frac{1}{2}}[A_1(n')+B_1(n')];\end{aligned}\right\}\quad(4\mathrm{A})$$

$$A_1(n') = -3n'^2-12,$$

$$B_1(n') = 3(77n'^2+68)\exp\left(-2n'\operatorname{cotg}^{-1}\frac{n'}{2}\right).$$

Discussion de M. Levinger. — Après avoir écrit ma Communication sur l'ionisation interne en émission α et β j'ai eu connaissance de calculs récents de G. W. Schaeffer (*M. A. Thèsis*, University of Toronto, Canada, 1953, non publié). Schaeffer calcule la probabilité d'ionisation interne des électrons K du Po lors de l'émission α et obtient des résultats tout à fait différents des miens. La méthode qu'il utilise semble très raisonnable mais je n'ai pas contrôlé ses calculs en détail.

En bref, Schaeffer évite le développement semi-convergent de mon travail en commençant par développer la perturbation en harmoniques sphériques. Il effectue ensuite les intégrations sur les fonctions d'onde radiales de l'électron et sur le temps, et obtient un développement convergent pour la probabilité d'ionisation. Il trouve : *a.* une probabilité appréciable de transitions monopo-

laires $S \to S$. Ceci peut être interprété comme le résidu adiabatique des transitions pour un changement brusque de la charge nucléaire; *b*. Les transitions dipolaires $S \to P$ augmentent légèrement par rapport aux résultats de Migdal à cause du recul nucléaire. (Dans mon travail je trouve que le recul nucléaire réduit grandement la probabilité des transitions dipolaires); *c*. les transitions quadrupolaires $S \to D$ sont à peu près celles données dans ma Communication.

Schaeffer trouve que la valeur de la probabilité d'ionisation pour les électrons K du Po pour une vitesse constante de la particule α est environ deux fois celle donnée par Migdal, soit 50 fois celle que je donne. Schaeffer introduit alors une correction pour une vitesse variable de la particule α et trouve que ceci abaisse la probabilité d'ionisation d'environ un facteur 2, ce qui redonne la valeur de Migdal. Schaeffer pense que les corrections relativistes diminueraient encore la probabilité d'ionisation ce qui donnerait un accord satisfaisant avec l'expérience.

Il serait intéressant d'appliquer les méthodes de Schaeffer au calcul de la probabilité d'ionisation des électrons L du Po.

Intervention de M. H. S. Burhop. — En cas d'ionisation de la couche interne des atomes par des particules α et des photons, les calculs de Henneberg (1932) au moyen de l'approximation de Born sont en bon accord avec l'expérience, même quand la durée du passage de la particule lourde est grande par rapport à la période de l'électron sur son orbite. Cela est dû au fait que l'interaction entre la particule incidente et l'électron interne est faible par rapport à celle entre ce dernier et le noyau.

De même on pourrait s'attendre à ce qu'un calcul, au moyen des perturbations du premier ordre, de l'ionisation interne par une particule α donne un meilleur accord avec l'expérience que ne l'indiquent les résultats de Levinger.

Intervention de M. Grace. — Il serait intéressant d'étendre les recherches d'autoionisation dans ^{211}Po à d'autres émetteurs α comme certains des éléments transuraniens, parmi lesquels on peut, je pense, trouver des émetteurs α purs. Cela supprimerait certaines des difficultés dues à la présence de radiations γ nucléaires.

BIBLIOGRAPHIE.

[1] Daudel R. — *J. Physique Rad.*, 1952, **13**, 553.
[2] Feinberg E. L. — *J. Phys. U. S. S. R.*, 1941, **4**, 424.
[3] Migdal A. — *J. Phys. U. S. S. R.*, 1941, **4**, 449.
[4] Levinger J. S. — *Phys. Rev.*, 1953, **90**, 11.
[5] Schwartz H. M. — *J. Chem. Phys.*, 1953, **21**, 45.
[6] Primakoff H. et Porter F. T. — *Phys. Rev.*, 1953, **89**, 930.
[7] Serber R. et Snyder H. S. — *Phys. Rev.*, 1952, **87**, 152.
[8] Winther A. — *Kgl. Danske Videnskab. Selskab, Mat.-fys. Medd.*, 1952, **27**, 3.
[9] Levinger J. S. — *Thèse*, Cornell University, 1948. Non publié.
[10] Schiff L. I. — Quantum Mechanics, Mc Graw-Hill Book Co., New-York, 1949; éq. (31.8).
[11] Bohm D. — Quantum Theory, Prentice-Hall, New-York, 1951; sect. 20.6.
[12] Huster E. — *Z. Physik*, 1953, **136**, 303.
[13] Madansky L. et Rasetti F. — *Phys. Rev.*, 1953, **89**, 679.
Novey T. B. — *Phys. Rev.*, 1953, **89**, 672.
Communications privées de Wu C. S., Howland et Rubinson, et Renard G.
[14] Curie I. et Joliot F. — *J. Physique Rad.*, 1931, **2**, 20.
Rubinson W. et Bernstein W. — *Phys. Rev.*, 1952, **86**, 545.
Grace, Allen, West et Halban. — *Proc. Phys. Soc.*, London, 1951, A **64**, 493.
Barber W. C. et Helm R. H. — *Phys. Rev.*, 1952, **86**, 275.
Riou M. — *J. Physique Rad.*, 1952, **13**, 244.
[15] Ramberg E. G. et Richtmyer F. K. — *Phys. Rev.*, 1937, **51**, 913.
Ramberg E. G. — Communication privée.
[16] Reitz J. R. — *Phys. Rev.*, 1950, **77**, 10; *Thèse*, Université de Chicago, 1949.

RECHERCHES RÉCENTES SUR LA RADIOACTIVITÉ DE ^{37}A

Par Aage WINTHER,
Institut de Physique théorique, Université de Copenhague.

Summary. — A discussion is given on a recent experiment by O. Kofoed-Hansen on the electron capture in ^{37}A.

The experimental K to L capture ratio is in strong disagreement with the theoretical. It is proposed that this may be due to the use of electron wave functions which does not explicitely depend on the relative distance between the electrons. Also a new treatment of the final ionization of the daughter atom is proposed.

Dans cette Communication nous rapportons certaines expériences récemment effectuées par O. Kofoed-Hansen [9] sur les effets Auger qui suivent la capture électronique dans ^{37}A. L'appareillage utilisé pour ces mesures a été conçu primitivement pour l'étude des reculs des noyaux qui accompagnent les désintégrations β, mais le cas plus simple de la capture électronique a été étudié en premier pour servir de test de cet appareillage.

Toutes les mesures sont relatives au processus

$$^{37}\mathrm{A} \xrightarrow[\text{capture } K,\, L,\, M]{} {}^{37}\mathrm{Cl} + \nu$$
$$\downarrow$$
$$\text{électrons Auger}$$

Dans ce processus, on détermine les grandeurs suivantes :

1° le moment du neutrino, qui est presque égal au moment des atomes de chlore de recul;

2° la probabilité de capture K;

3° la distribution de la charge des atomes de chlore après intervention des effets Auger;

4° le moment moyen des électrons Auger.

Avant de rapporter les résultats expérimentaux, nous donnerons une brève description de l'appareillage.

1. Les instruments. — L'appareillage comporte, en principe, une série de plaques de condensateur plans et parallèles (champ électrique F). Un champ magnétique (H) est appliqué parallèlement aux plaques (*fig.* 1).

Les atomes d'argon constituent un gaz entre les plaques et ainsi les captures électroniques se produisent uniformément dans le volume situé entre ces plaques. Au point de désintégration il y a émission d'un neutrino, puis après un très court instant ($< 10^{-10}$ s), celle des électrons Auger. Ces électrons,

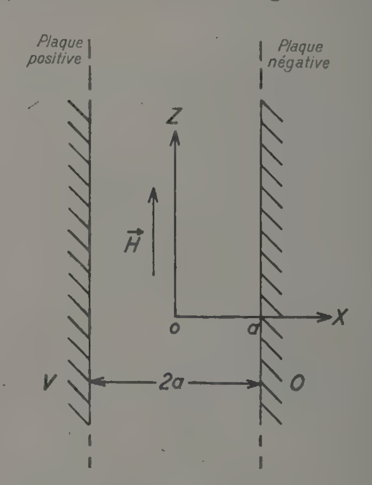


Fig. 1. — Principe de l'appareil.

ainsi que les atomes de chlore de recul, se meuvent suivant des orbites spirales dans le champ électromagnétique, et l'on peut calculer la probabilité pour qu'ils frappent les plaques du condensateur en admettant que la pression est assez faible pour qu'il n'y ait aucune collision avec les molécules du gaz.

On mesure les courants des plaques positive i_+ et négative i_- en fonction des grandeurs de champ K et F. Ces courants sont donnés par les probabilités

mentionnées ci-dessus suivant les formules

$$\left.\begin{aligned} i_+ &\approx eN\sum_Z S_Z Z h(H, F, p_R, Z) \\ &\quad - N\langle Z\rangle e\frac{\pi}{4}\frac{\langle p_e\rangle c}{2aHe}, \\ i_- &\approx eN\sum_Z S_Z Z f(H, F, p_R, Z) \\ &\quad - N\langle Z\rangle e\frac{\pi}{4}\frac{\langle p_e\rangle c}{2aHe}. \end{aligned}\right\} \quad (1)$$

Les premiers termes correspondent aux charges transportées par les atomes de recul. N désigne le nombre total de désintégration, S_Z la probabilité d'obtenir la charge Z, tandis que h et f sont des

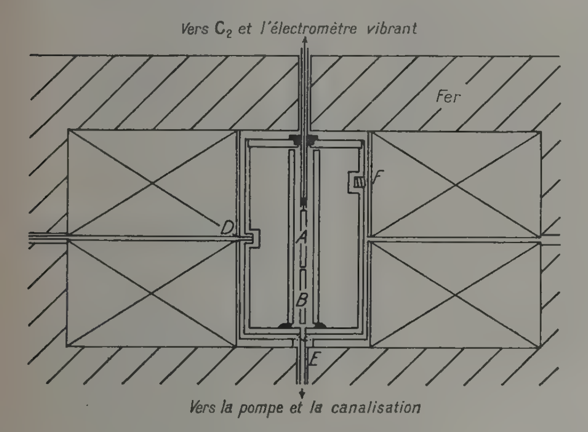


Fig. 2 — Plan de l'appareil.

fonctions assez compliquées de H, de F, du moment de recul p_R et de Z. La sommation est faite sur toutes les charges possibles. Les seconds termes correspondent aux charges transportées par les électrons Auger, dont le nombre est $N < Z >$, $< ps >$ désigne leur moment moyen.

On supposera que le moment de recul p_R a une valeur égale au moment du neutrino. Le recul provenant des électrons Auger produira en fait un élargissement de quelques pour-cent de la raie étroite.

Pour de plus amples détails sur la théorie de cet appareillage, *cf.* O. Kofoed-Hansen [1].

L'instrument réel de mesure est formé par un grand aimant (*fig.* 2).

A l'intérieur du champ presque homogène (à moins de 2 pour 100) se trouve une chambre à vide avec une double série de plaques de condensateur. Le seul intérêt de ce doublage est de faciliter la construction de l'appareil. La partie centrale A de la plaque médiane est isolée électriquement du reste de la plaque et reliée à travers un joint étanche à un électromètre à hanche vibrante et à un condensateur supplémentaire C_2 d'environ 60 cm.

La deuxième plaque de C_2 est reliée à un potentiomètre, de sorte que l'électromètre à hanche vibrante n'est employé que comme indicateur de zéro. On détermine le courant de la plaque A en mesurant le temps nécessaire pour charger C_4 jusqu'à 1 V. De cette manière on peut mesurer des courants de l'ordre de 10^{-17}A, c'est-à-dire obtenir une précision de l'ordre de 0,1 pour 100 pour i_+ et i_- qui sont de l'ordre de 10^{-14} A.

En inclinant l'ensemble de la chambre à vide, on peut aligner les plaques parallèlement au champ magnétique.

L'^{37}A fut produit sans impureté dans la pile de Harwell par la réaction Ca (n, α) et envoyé à Copenhague après avoir été entouré de Ca. On l'introduit dans le vide étanche de l'instrument en chauffant le Ca jusqu'à évaporation dans l'appareil où l'on a fait le vide. Un autre foyer à Ca, agissant comme absorbant, permet de maintenir la pression dans l'appareil de 10^{-5} à 10^{-3} mm Hg pendant un mois sans pompage.

2. **Les Résultats.** — Si l'on mesure i_+ et i_- pour différentes valeurs de H et F, on peut en déduire par les équations (1) les quantités $S_Z c p_R \langle p_e \rangle$ et $\langle Z \rangle$. On trouvera dans un article à paraître, par O. Kofoed-Hansen et A. Nielsen [2] une description détaillée de la méthode employée.

Les résultats sont les suivants :

L'énergie du neutrino $p\ c$ est égale à 812 ± 8 keV. Cette valeur est en accord complet avec celle que l'on peut déduire des mesures de la grandeur Q, soit

$$p_R c = 813 \pm 4 \text{ keV}.$$

La charge moyenne $\langle Z \rangle$ des atomes de recul ^{37}Cl après intervention des effets Auger est égale à 2,65 ± 0,08.

La distribution de la charge des atomes ^{37}Cl après intervention des effets Auger est la suivante :

Atomes de recul	avec la	charge	1.......	26 ± 3	pour 100
»	»	»	2.......	13 ± 4	»
»	»	»	3.......	38 ± 4	»
»	»	»	4.......	18 ± 2	»
»	»	»	5.......	4 ± 1	»
»	»	»	6.......	1 ± 1	»

ce qui donne la même valeur pour $\langle Z \rangle$.

Le moment moyen des électrons, c'est-à-dire des électrons Auger provenant de l'atome ^{37}Cl est

$$\langle p_e c \rangle = 20{,}4 \pm 0{,}3 \text{ keV} \quad \text{ou} \quad \frac{\langle p \rangle^2}{2m} = 407 \text{ eV}.$$

Le calcul théorique de ce moment moyen présente

quelques difficultés. D'après la théorie simple et les mesures anciennes de Pontecorvo et al. [3], ^{37}A se désintègre suivant les captures K et L avec des probabilités relatives de 92 et 8 pour 100. Cela signifie que dans 92 pour 100 des cas nous obtenons un atome ^{37}Cl ayant un trou dans la couche K, qui à son tour, doit être rempli par un électron L ou M.

Dans 90 pour 100 environ des cas parmi les 92 pour 100 considérés, il en résultera un électron Auger d'environ 2 400 eV. Si le moment moyen doit s'abaisser à la valeur mesurée, on doit admettre qu'un nombre élevé d'électrons de faible énergie est émis simultanément; mais alors nous sommes en contradiction avec la charge moyenne qui n'est que de 2,65.

Lorsque les physiciens ont compris cette difficulté, certains d'entre eux ont étudié spécialement le groupe des électrons d'énergie voisine de 2 400 eV. Ils ont trouvé des électrons ayant une énergie de 2 300 $\pm$ 120 eV, dont le nombre ne peut correspondre qu'à 65 $\pm$ 5 pour 100 du nombre total de désintégration.

Le rapport $\frac{\text{capture } L}{\text{capture } K}$ est ainsi considérablement plus grand que celui prévu; d'un autre côté on ne rencontre plus de difficulté pour accorder le moment moyen des électrons avec la valeur mesurée de 20 keV.

3. **Comparaison théorique**. — D'après les mesures, la probabilité de capture $L+M$ est d'environ 25 pour 100. Cette valeur est trois fois plus grande que celle qui est donnée par un calcul simple avec des fonctions d'ondes monoélectroniques. La meilleure valeur, obtenue avec les fonctions d'onde de Hartree est ainsi de 8,2 pour 100 [4].

Cependant, si l'on tient compte de la dépendance des fonctions d'onde avec les distances entre les électrons K et L, on doit s'attendre à ce que, les électrons K étant absorbés par le noyau, les électrons L puissent sauter sur l'orbite K, l'énergie supplémentaire étant emportée par le neutrino. Nous avons une sorte d'effet Auger immédiat, l'atome restant avec un trou dans sa couche L. Ainsi on peut prévoir que l'emploi de fonctions d'onde plus exactes aura pour effet d'augmenter la probabilité de capture L.

Dans une description plus rigoureuse, on aura une fonction d'onde complétement antisymétrique pour tous les électrons, dépendant aussi de leurs distances relatives. On trouvera la fonction d'onde après la capture électronique en fixant les coordonnées de l'un des électrons par rapport à celles du noyau. La fonction d'onde résultante ne sera alors pas une fonction propre de l'atome final, mais une superposition d'états ayant un électron K, L ou M absent. Les carrés des amplitudes de ces états donneront les probabilités de capture K, L et M.

Pour illustrer l'effet de l'interaction entre électrons, on a considéré la capture électronique hypothétique de l'hélium. En utilisant des fonctions d'onde simples avec écran pour l'état fondamental de He, nous trouvons que l'excitation de l'atome d'hydrogène résiduel est de 6,3 eV. Avec la fonction d'onde plus précise de Hylleras pour l'état fondamental de He, nous obtenons seulement 3,3 eV.

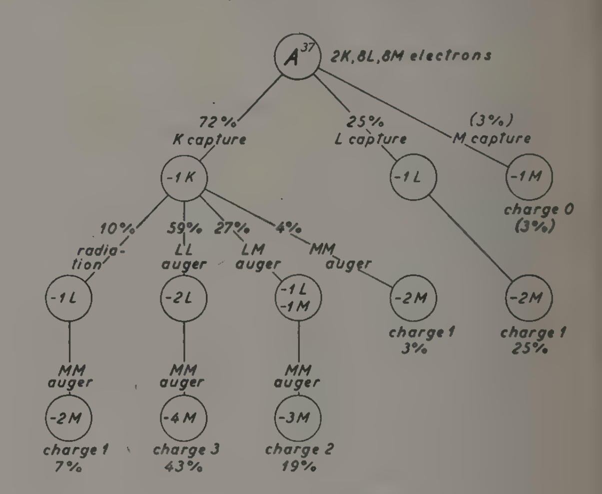


Fig. 3. — La désintégration de ^{37}A.

Benoist-Gueutal [5] donne une démonstration bien plus évidente de cet effet. Cet auteur a calculé la probabilité de capture L dans le cas de la capture électronique de Be avec des fonctions d'onde comprenant les distances relatives. Il apparaît que la probabilité de capture L est 2,2 à 3,3 fois plus grande que la valeur trouvée par les procédés ordinaires.

Il semble donc probable qu'un calcul amélioré pourrait dans le cas de ^{37}A donner une valeur bien supérieure à 8,2 pour 100.

Nous allons maintenant tenter un examen des différents processus possibles (*fig.* 3).

Nous avons déterminé le rapport $\frac{K}{L}$ de telle sorte que, avec une probabilité de radiation de 10 pour 100 [6] vers un trou de la couche K, nous obtenons, dans 65 pour 100 des cas, un électron Auger de haute énergie. L'expérience ne fait aucune distinction entre les effets Auger LL, LM et MM; les probabilités relatives de ces transitions sont données par Pincherlee [7]. Nous avons négligé les probabilités de transition à partir d'états ayant un trou dans la couche L.

Le spectre de charges (pour 100 ^{37}Cl) résultant de ce schéma hypothétique est le suivant :

Avec la charge 0.....	3 pour 100	
» » 1.....	35 »	(25 + 3 + 7 pour 100)
» » 2.....	19 »	
» » 3.....	43 »	

Lorsqu'on compare ce spectre de charge avec le spectre mesure, on remarque deux caractères essentiels :

1° La théorie redonne les résultats expérimentaux d'après lesquels on a moins d'ions à charge double que d'ions à charges simple et triple.

2° La théorie ne redonne pas la queue du spectre de charge, c'est-à-dire les ions observés avec des charges ≥ 4. Comme nous l'avons vu, il est difficile de comprendre cette queue dans un modèle de couches décrit par des fonctions monoélectroniques. On peut cependant prévoir que, dans les couches L et M, où il y a un assez grand nombre d'électrons en forte interaction les uns avec les autres, la dynamique de l'atome sera gouvernée en grande partie par des types collectifs de mouvement. Si nous avons un trou par exemple dans la couche L, on peut prévoir que l'excitation de l'atome se distribuera rapidement sur de nombreux électrons. Dans un tel gaz d'électrons excités, les électrons seront émis par une sorte de processus d'évaporation, et l'on aura la possibilité d'obtenir un nombre assez grand d'électrons d'assez faible énergie.

Nous n'avons fait aucun calcul quantitatif du nombre d'électrons qui seraient émis à partir d'un état ayant un trou, par exemple dans la couche L; mais il semble que l'émission de trois ou quatre électrons pourrait se faire aisément. Dans un calcul amélioré, on devrait sans doute traiter le remplissage du trou K de la manière habituelle, avec une amélioration des rapports des effets Auger LL, LM et MM. D'autre part, pour le remplissage d'un trou dans la couche L, il peut y avoir une sérieuse compétition entre deux processus : celui où un électron est émis avec une énergie totale d'excitation de 200 eV environ et celui où deux électrons ou plus sont émis avec une énergie correspondant à la température du gaz excité, sans doute ≈ 70 eV. On peut espérer qu'un tel traitement donnera une distribution de charge correcte.

Nous allons finalement essayer d'évaluer, suivant cette description, le moment moyen des électrons Auger.

Nous savons par l'expérience que, en 100 désintégrations, 65 électrons sont émis avec une énergie $\approx$ 2 400 eV. De plus, d'après la charge moyenne, environ 265 électrons sont émis au total. Si nous supposons que les 200 électrons de basse énergie ont une énergie d'environ 100 eV, nous obtenons

$$\frac{\langle p \rangle}{2m} = \left(\sqrt{2\,400} \times 65 + \sqrt{100} \times 200\right)/1\,265,$$
$$= 19,5,$$
$$\frac{\langle p \rangle^2}{2m} = 380 \text{ eV},$$

ce qui est en assez bon accord avec la valeur mesurée.

Conclusion. — Ces expériences sont préliminaires, en ce sens que, avec un meilleur aimant, on pourrait améliorer considérablement la précision des résultats. Cependant, pour les recherches théoriques deux caractères semblent importants. Premièrement, le rapport élevé des probabilités de capture L et K; on ne peut sans doute comprendre ce caractère qu'en utilisant une fonction d'onde électronique qui dépend explicitement de la distance entre les électrons.

Deuxièmement, les charges en général assez élevées des atomes résiduels; ce caractère ne peut sans doute être compris que comme la conséquence d'une certaine excitation collective de gaz d'électrons.

Ces deux caractères sont liés à l'interaction mutuelle entre les électrons. Lindhard et Scharff ont discuté récemment la signification de cette interaction, dans un article où ils montrent l'importance des types collectifs de mouvement du gaz électronique autour d'un atome lorsqu'on étudie l'arrêt des particules chargées dans la matière [8].

Pour la comparaison avec la théorie, il serait naturellement très intéressant d'avoir des données analogues à celles qui sont rapportées ici, pour des noyaux plus lourds, pour lesquels l'influence des mouvements collectifs doit être encore plus prononcée.

La communication présentée est le résultat de discussions avec O. Kofoed-Hansen et J. Lindhard.

Intervention de M. Radvanyi. — Les transitions sans rayonnement, du type Coester-Kronig, entre les sous-couches L n'ont-elles pas un effet sur la charge résiduelle de l'atome ? En particulier ne peuvent-elles pas expliquer les charges résiduelles importantes observées pour une certaine proportion de captures ?

Les calculs de Mme Benoist sur l'augmentation du rapport $\frac{\text{capture } L}{\text{capture } K}$ pour ^{7}Be par suite de l'effet d'échange entre les électrons atomiques, n'indiquent-ils pas que cet effet doit être plus petit pour des radioéléments plus lourds que ^{7}Be ?

Si cet effet d'échange (avec report de l'énergie sur le neutrino) pouvait expliquer les résultats expérimentaux obtenus pour ^{37}A, suffirait-il aussi à expliquer les écarts observés pour la capture L de radioéléments encore plus lourds (^{79}Kr, ^{103}Pd, transuraniens) ?

Réponse de M. Winther. — On n'a pas tenu compte des transitions du type Coester-Kronig dans le schéma de désintégration. Elles donneraient certainement naissance à des ions de charge plus élevée.

Intervention de M. Haynes en réponse à M. Win-

ther. — Il existe 6 à 10 mesures de $\frac{K - LL}{K - LM}$ pour les grandes valeurs de Z qui diffèrent considérablement des résultats de Pincherle. A mon avis, il vaudrait mieux prendre une valeur extrapolée à partir des résultats expérimentaux, plutôt que les résultats de Pincherle.

Intervention de M. Deutsch. — Quelle est la vie moyenne approximative de ces états atomiques ? Est-elle complètement négligeable vis-à-vis du temps de traversée de la chambre ?

Réponse de M. Winther. — La vie moyenne pour l'effet Auger est complètement négligeable par rapport au temps de déplacement des ions.

Intervention de M. Curran. — La probabilité de capture M de 3 pour 100, que l'on essaye de proposer, est d'une grandeur intéressante. Elle rendrait possible l'emploi d'une méthode physique pour changer le taux de décroissance dans le cas des gaz rares, auxquels les méthodes chimiques introduites par Daudel ne s'appliquent pas. De l'argon contenant ^{37}A pourrait être maintenu à l'état excité pendant de longues périodes par une décharge du type H. F. ou P. I. G. Cette possibilité dépend de l'existence d'états excités métastables. La modification, à partir de sa valeur normale ($^{3}\gamma$) de la période de décroissance permettrait de vérifier la probabilité de 3 pour 100 proposée pour la capture M. Les estimations antérieures rendaient au contraire l'expérience bien hasardeuse.

Réponse de M. Winther. — Le schéma de désintégration de la figure 3 ne prétend pas être autre chose qu'une illustration et la probabilité de capture M est tout à fait arbitraire.

BIBLIOGRAPHIE.

[1] O. Kofoed-Hansen, *Dan. Mat. Fys. Medd.*, 1951, **26**, n° 8.
[2] O. Kofoed-Hansen. et A. Nielsen, *Dan. Mat. Fys. Medd.* (sous presse).
[3] Pontecorvo et al. *Phys. Rev.*, 1949, **75**, 982.
[4] P. Benoist et M. Jean, *C. R. Acad. Sc.*, 1949, **228**, 1848.
[5] Benoist-Gueutal, *Ann. Physique*, 1953, 8, 593.
[6] G. L. Locher, *Phys. Rev.*, 1932, **40**, 484.
[7] Pincherlee, *Nuovo Cimento*, 1935, **12**, 81.
[8] Linhard et Scharff, *Dan. Mat. Fys. Medd.*, 1953, **27**, n° 15.
[9] O. Kofoed-Hansen, *Phys. Rev.*, 1954, **96**, 1045.

L'ÉTUDE EXPÉRIMENTALE DE LA PERTURBATION APPORTÉE AU CORTÈGE ATOMIQUE PAR LA DÉSINTÉGRATION β ET LA CAPTURE ÉLECTRONIQUE

Par Georges CHARPAK,

Physique et Chimie nucléaires, Collège de France, Paris.

Summary. — Analysis of experimental methods in the study of autoionisation effects in β-decay and K capture. Experiments on ^{55}Fe and ^{32}P show agreement with theory but for a still unexplained tail of electrons above 5 keV, in coincidence with ^{32}P β-rays in five cases in a 1000, and whose half-thickness value is 0.2 mg/cm² Al.

Lors d'une désintégration nucléaire par émission β ou capture électronique, diverses causes peuvent, en principe, provoquer l'éjection d'un électron des couches atomiques, soit hors de l'atome, soit dans un niveau lié non occupé.

a. La conversion de l'énergie d'excitation du noyau résiduel. Cet effet ne sera pas envisagé ici.

b. Le recul du noyau.

c. L'interaction directe entre la particule β et le cortège.

d. La variation de la charge nucléaire de Z à $Z \pm 1$.

L'étude théorique de Migdal et Feinberg, suivie des travaux de nombreux auteurs [*b* 1] à [*w* 1], montre que les effets *b* et *c* sont, en général, négligeables devant l'effet de la variation de la charge nucléaire. Celui-ci est calculé avec les approximations suivantes : états individuels des électrons décrits par des fonctions d'onde hydrogénoïdes non relativistes, variation brusque de la charge nucléaire. Ces approximations sont valables pour des atomes légers et une énergie moyenne des rayons β grande devant l'énergie de liaison des électrons atomiques.

La dernière colonne du tableau I représente la probabilité d'éjection hors de l'atome, des électrons de la couche considérée (autoionisation).

La seconde colonne donne la limite supérieure de la somme des probabilités d'autoionisation et de transition à un niveau lié inoccupé (autoexcitation).

Dans la capture électronique, la probabilité d'ionisation décroît pour les couches externes, contrairement à ce qui a lieu dans la radioactivité β.

On voit que les effets sont très faibles, sauf pour les atomes légers. Dans le cas de ^3H et ^6He, le calcul a pu être fait rigoureusement [*w* 1].

Le calcul de la probabilité globale d'autoionisation et d'autoexcitation ne demande que la connaissance des fonctions d'onde de l'état fondamental. Par la méthode de Fock-Hartree, celles-ci sont parfois connues avec une meilleure précision que par l'approximation des fonctions hydrogénoïdes, ce qui permet des estimations plus exactes que les précédentes [*l* 1].

Cette probabilité globale est précisément la grandeur que permet d'obtenir la mesure du nombre de photons d'une série déterminée, émis lors de la désintégration d'un émetteur β pur.

Tableau I.

		(*).	Probabilité d'autoionisation.
Émission β+ ou β−.	Électron K	$0,75/Z^2$	$0,326/Z^2$
	Couche K	1,5 »	0,65 »
	Électron L_I	2,25 »	0,47 »
	Électrons L_{II} et L_{III}	1,25 »	0,21 »
	Couche L	12 »	2,21 »
	Couche M	58 »	4,3 »
Capture K.	Couche K	0,18 »	0,08 »

(*) Limite supérieure de la probabilité d'ionisation et d'excitation.

Les études expérimentales de l'autoionisation et de l'autoexcitation. — Nous classerons les divers travaux suivant la méthode employée pour mettre en évidence les phénomènes que nous envisageons.

1. *Observation des raies caractéristiques émises par un radioélément* β. — La figure 1 montre la variation en fonction de Z, du produit de la probabilité d'ionisation de la couche K, par le rendement de fluorescence [B 1].

On voit que c'est pour les éléments voisins de $Z = 25$ que la méthode est la plus favorable.

Howland et Rubinson [H 1] ont observé des photons caractéristiques K dans la désintégration de ^{35}S. Rubinson nous a signalé qu'il estimait devoir reprendre ces expériences en raison du rôle

possible de l'ionisation externe provoquée par les rayons β dans la matière de sa source.

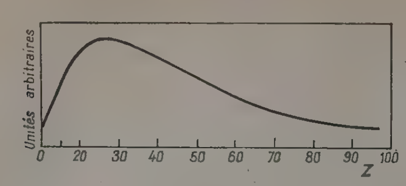


Fig. 1. — Variation en fonction de Z, du produit de la probabilité d'ionisation de couche K par le rendement de fluorescence.

Renard [R 1] a observé, avec une source sans matière, préparée par projection thermique dans le vide, les photons K du soufre, dans la désintégration du ^{32}P. En admettant pour le rendement de fluorescence de la couche K la valeur tirée de la relation semi-empirique de Burhop [B 3] il obtient pour la probabilité globale d'ionisation de la couche K la valeur $7{,}5 \cdot 10^{-3}$, supérieure à la valeur théorique $3{,}8 \cdot 10^{-3}$, obtenue à partir d'un calcul de Levinger, utilisant les fonctions de Fock-Hartree relatives à Cl^- et A [l 1].

Notons que pour les atomes légers, cette méthode peut conduire à d'importantes incertitudes car le résultat dépend, de façon sensible, des rendements de fluorescence pour lesquels on ne dispose pas de mesures précises dans ce domaine des nombres atomiques.

F. Boehm et C. S. Wu [B 1] ont étudié les photons K et L émis par les atomes lourds ^{147}Pm et RaE. Le tableau suivant résume leurs résultats.

TABLEAU II.

Résultats de F. Bœhm et C. S. Wu.

		Résultats expérimentaux.	Théorie : Migdal ou Feinberg.	Théorie : Levinger.
^{147}Pm	K...	$(3{,}85 \pm 0{,}5) \cdot 10^{-4}$	$1{,}64 \cdot 10^{-4}$	$2{,}36 \cdot 10^{-4}$
	L...	$(2{,}05 \pm 0{,}3) \cdot 10^{-3}$	$1{,}77 \cdot 10^{-4}$	$1{,}9 \cdot 10^{-3}$
RaE.	K...	$(1{,}2 \pm 0{,}5) \cdot 10^{-4}$	$0{,}95 \cdot 10^{-4}$	$1{,}28 \cdot 10^{-4}$
	L...	$(0{,}6 \pm 0{,}3) \cdot 10^{-4}$	$1{,}01 \cdot 10^{-3}$	$1{,}04 \cdot 10^{-3}$

Dans la dernière colonne, il est tenu compte de l'effet d'écran calculé par Levinger. On voit que l'excitation de la couche K du ^{147}Pm est plus fréquente que ne le prévoit la théorie. L'énergie moyenne des rayons β (65 keV) est de l'ordre de l'énergie de liaison des électrons K (45 keV). L'hypothèse de variation brusque de la charge nucléaire n'est plus justifiée. Les conditions se rapprochent d'une variation adiabatique et l'on devrait observer au contraire des transitions moins fréquentes.

La masse superficielle de la source de ^{147}Pm est estimée à $10\,\mu g/cm^2$. La probabilité d'ionisation externe de la couche K, par les rayons β, est de $6 \cdot 10^{-7}$, d'après le calcul. Elle ne peut rendre compte que de 1/500e du nombre des photons K observés. Il faudrait admettre une erreur considérable dans l'évaluation de la densité superficielle pour expliquer la discordance avec la théorie.

Novey [N 1] a observé, dans le spectre des photons émis par une source de RaE, une raie dont l'énergie et la probabilité d'émission pourraient être interprétées par l'ionisation de la couche interne. Il observe toutefois la même raie avec ^{32}P, ce qui conduit à penser que, dans ses conditions expérimentales, il s'agit surtout du rayonnement de fluorescence provoqué par les rayons β dans le plomb situé au voisinage de la source.

2. *Observation directe des électrons éjectés hors de l'atome.* — Cette méthode est utilisable lorsque le schéma de désintégration est tel que seuls les processus envisagés peuvent être la cause de l'émission d'électrons par l'atome radioactif. C'est le cas des noyaux se désintégrant par émission β^+. C'est également le cas de la capture électronique lorsque l'énergie des électrons détectés est supérieure à l'énergie maximum des électrons Auger de réarrangement.

Bruner [B 2] a constaté, dans le ^{44}Sc (β^+ et capture K) l'émission dans 4 pour 100 des désintégrations, d'un spectre continu d'électrons d'énergies comprises entre 30 et 150 keV. Le désaccord avec les théories citées est considérable si ces électrons sont attribués à l'autoionisation. Cependant, un travail que nous avons récemment effectué avec F. Suzor [C 4] montre que les observations de Bruner pourraient s'interpréter par les électrons projetés dans les cristaux de la source par les positons.

Porter et Hotz [P 2] ont tenté d'observer, à l'aide d'une chambre Wilson, les électrons d'énergies supérieures à 30 keV émis par une source de ^{55}Fe qui se désintègre par capture électronique pure. Ils observent 0,6 électron pour 10^6 désintégrations, ce qui est en bon accord avec les prévisions de la théorie.

3. *Mesure de la charge portée par l'atome résiduel.* — En principe, les effets envisagés peuvent influer sur la charge finale de l'atome résiduel. La plupart des résultats anciens, obtenus à partir de sources déposées sur des solides, sont entachés de grandes incertitudes en raison de la complexité des phénomènes d'émission d'ions par les solides.

Certaines mesures récentes ont été effectuées avec des radioéléments gazeux ou certains de leurs composés chimiques gazeux.

Ainsi, Wexler et Davies [W 1] ont mesuré la charge moyenne des atomes résiduels de la désinté-

gration de ^{3}H et ^{14}C :

^{3}H (sous forme de H_2).......	0,87	1,00	0,91	0,89
^{14}C (sous forme de CO_2)......	0,8	1,3	1,0	–

L'imprécision des mesures est encore trop grande pour permettre l'estimation des effets envisagés.

4. *Mise en évidence de l'émission simultanée du rayonnement lié à la désintégration nucléaire et du rayonnement lié à la perturbation apportée au cortège atomique.* — Après la capture d'un électron K, la variation de la charge nucléaire peut provoquer le départ de l'électron résiduel de la couche K.

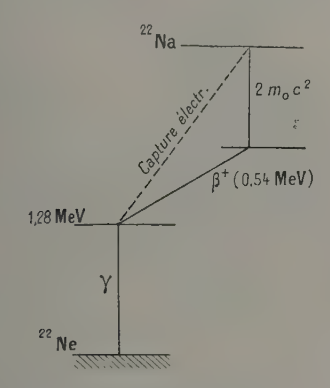


Fig. 2. — Double compteur 2π.
Le dispositif est décrit de façon détaillée par ailleurs [C 2].

Ceci peut être mis en évidence de deux façons :

a. Dans un compteur proportionnel, on observe des impulsions correspondant à une énergie double de l'énergie du rayonnement K. Il importe, dans ce cas, d'utiliser des sources suffisamment peu intenses pour que soit négligeable la probabilité de désintégration de deux atomes dans un intervalle de temps égal au temps de résolution du compteur.

Perlman et Miskel [P 1] ont ainsi obtenu la valeur $(4,8 \pm 0,8).10^{-4}$ pour la probabilité de double ionisation de la couche K de ^{37}Cl, à la suite de la capture K dans ^{37}A, en bon accord avec la théorie.

b. On étudie les coïncidences provoquées par la source entre deux compteurs proportionnels.

Avec deux compteurs 2π nous avons ainsi mis en évidence dans le ^{55}Fe [C 1], l'émission simultanée de deux rayonnements qui ne peut être attribuée à la cascade de rayonnements qui suit normalement une vacance dans la couche K.

En admettant que les coïncidences observées sont dues aux effets envisagés, nous obtenons $(3,9 \pm 0,9).10^{-4}$ pour la fréquence du phénomène de double ionisation de la couche K du ^{55}Fe, en bon accord avec la valeur théorique $2,7.10^{-4}$.

Avec les mêmes compteurs, nous avons étudié, en collaboration avec F. Suzor [C 3], [C 4], le rayonnement émis par ^{32}P simultanément avec la particule β.

La source de ^{32}P est déposée par projection thermique dans le vide sur un support de LC 600 aluminisé de chaque côté dont l'épaisseur est approximativement de 20 μg/cm². Cette feuille est tendue sur un trou de 3 mm de diamètre, qui sépare deux compteurs 2π. La masse superficielle moyenne de la source est 1/10e de microgramme par centimètre carré. L'autoradiographie montre une répartition uniforme de l'activité et non la concentration dans quelques cristaux isolés comme dans le cas du dépôt d'une goutte évaporée.

Les deux compteurs, remplis avec le mélange argon-alcool (8 et 1 cm de hauteur de mercure), fonctionnant en Geiger, nous avons étudié les coïncidences en faisant varier l'épaisseur d'écrans placés à 1,5 mm de la source. Nous observons que dans 4,5 cas pour 1000, il y a émission d'un rayonnement associé aux rayons β et dont l'énergie est suffisante pour franchir 0,17 mg/cm² d'aluminium. Dans un cas sur 1000 les coïncidences observées peuvent être attribuées à la fraction de basse énergie du rayonnement de freinage interne.

Dans 3,5 des cas sur 1000, il s'agit d'électrons dont l'absorption moitié dans l'aluminium est de 0,2 mg/cm². Une étude des diverses causes de coïncidences parasites entre les deux compteurs 2π semble exclure que ces électrons soient dus à un effet secondaire du rayonnement β dans les écrans ou dans les gaz de remplissage.

La théorie de l'autoionisation prévoit près de 30 fois moins d'électrons d'énergie suffisante pour franchir un écran de 0,17 mg/cm².

L'étude des électrons projetés par les rayons β nous a montré qu'une source de ^{32}P, obtenue par évaporation d'une goutte, était équivalente à une source uniforme de même activité spécifique placée contre un écran de 0,5 mg/cm² d'aluminium. La quantité réelle de matière placée au voisinage des atomes radioactifs peut être sous-estimée d'un facteur de l'ordre de 1000 lorsque l'on suppose que le dépôt d'évaporation d'une goutte est uniforme. L'erreur relative est d'autant plus grande que l'épaisseur moyenne calculée est plus faible devant la dimension réelle des cristaux dans lesquels est concentrée la source.

Le fonctionnement Geiger ne nous a pas permis d'étudier les électrons dont l'énergie est insuffisante pour franchir l'écran d'épaisseur minimum utilisé : 0,17 mg/cm² Al, en raison de la sensibilité du compteur aux électrons d'énergie pratiquement nulle et à la grande variété des effets secondaires susceptibles de provoquer l'émission d'électrons de très basse énergie. Nous avons poursuivi l'étude des coïncidences, avec les mêmes compteurs fonctionnant dans le domaine de semi-proportionnalité,

avec le mélange d'argon et de gaz carbonique à la pression atmosphérique (72 cm argon, 3 cm CO_2), sous une tension de 2 000 V.

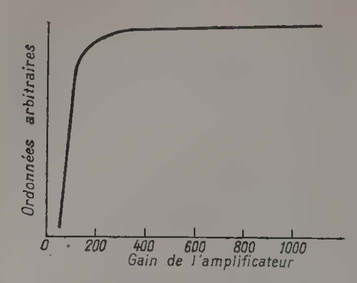


Fig. 3. — Nombre de photons de 5,9 keV comptés dans un canal en fonction du gain de l'amplificateur. Ce dernier est précédé d'un préamplificateur à grain fixe.

Par deux amplificateurs de bande passante 10 Mc, les impulsions sont envoyées dans un sélecteur de coïncidences dont le temps de résolution est $2{,}7.10^{-7}$ s. Chaque canal du sélecteur admet les impulsions dont

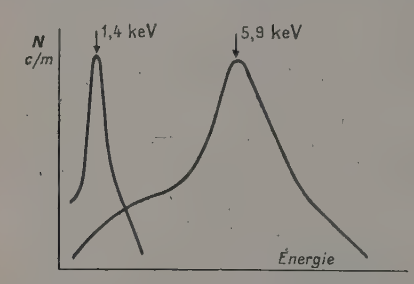


Fig. 4. — Raie du fer, déduite des résultats de la figure 3, et raie *K* de l'aluminium obtenue dans les mêmes conditions.

l'énergie est supérieure à un certain seuil fixe. En faisant varier le gain des amplificateurs, nous obtenons une intégration du spectre d'énergie des impulsions. L'étude de la raie de 5,9 keV émise par le ^{55}Fe et de la raie de 1,4 keV émise par l'aluminium bombardé par les rayons α du polonium, montre que le système est sensiblement linéaire et que la résolution en énergie de ces raies est de l'ordre de 50 pour 100 à mi-hauteur.

Une source de ^{32}P émettant près de 100 000 rayons β par minute dans l'angle 2 π, est préparée par projection dans le vide dans les mêmes conditions que précédemment.

Nous maintenons fixe l'amplification des impulsions du compteur C^1 situé du côté du support de source. Nous faisons varier l'amplification du canal recevant les impulsions du compteur C^2 situé du côté de la source. La variation du nombre des coïncidences observées nous permet d'obtenir le spectre intégral des impulsions associées aux rayons β, L'étude de l'absorption dans des écrans d'aluminium situés à 1,5 mm de la source nous permet d'éliminer les impulsions dues aux photons de basse énergie du spectre de freinage interne, qui jouent un rôle important en raison de la pression d'argon utilisée.

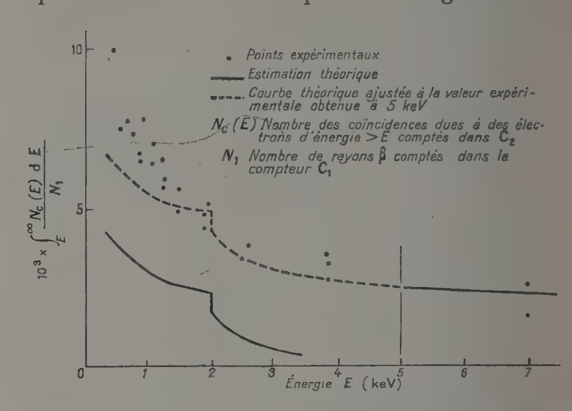


Fig. 5. — Spectre intégral des impulsions produites dans un compteur 2 π par les électrons associés aux rayons β comptés dans le deuxième compteur 2 π.

La figure 5 représente le spectre intégral des impulsions produites dans un compteur 2 par les électrons associés aux rayons β. Nous avons calculé ce spectre en utilisant les résultats théoriques suivants :

Probabilité d'autoionisation de la couche *K*.... $2{,}8.10^{-3}$
» d'autoexcitation de la couche *K*.... $1{,}0.10^{-3}$
» d'éjection hors de l'atome d'un électron *L*.............................. $2{,}2.10^{-2}$

Nous utilisons la répartition en énergie des électrons éjectés des couches *K* et *L* prévue par la théorie.

Nous négligeons les phénomènes dont l'énergie est de l'ordre de l'énergie de liaison *L* (400 eV). Nous supposons le rendement de fluorescence égal à zéro.

On remarquera que, dans certains cas, l'électron Auger *K* et l'électron éjecté additionnent leurs énergies dans le même compteur de sorte qu'une très bonne résolution au voisinage de 2 keV permettrait, en principe, d'obtenir des renseignements sur le nombre d'électrons éjectés dont l'énergie est voisine de zéro.

La comparaison des résultats expérimentaux et théoriques montre que les impulsions d'énergie supérieure à 5 keV ne peuvent être expliquées par la théorie de l'autoionisation. Entre 0,5 et 5 keV, leur nombre est compatible avec la théorie, l'excès d'électrons de très basse énergie pouvant être dû à la résolution en énergie plus mauvaise et aux électrons retrodiffusés par la feuille de LC 600.

Le spectre des électrons associés, observés à travers le support de source de LC 600 confirme

l'existence des électrons d'énergie supérieure à 5 keV. Afin d'évaluer l'importance des électrons projetés dans le gaz du compteur par les rayons β, nous avons repris ces expériences à une pression d'argon plus basse (1/8e d'atmosphère). Aux erreurs statistiques près, nous obtenons les mêmes résultats, y compris les impulsions d'énergie supérieure à 5 keV. Ceci confirme que la majorité des impulsions est bien due à des électrons et non à des photons, mais ne permet pas de conclure quant à la contribution des électrons projetés dans le gaz. A cette pression, en effet, la majorité des particules β ne perd que 400 à 500 eV dans le gaz et nous ne comptons que la fraction la plus ionisante, c'est-à-dire aussi celle qui a la plus grande probabilité de projeter des électrons.

Les résultats obtenus avec les compteurs 2 π fonctionnant en Geiger confirment cependant l'existence d'électrons associés aux rayons β, qui ne semblent pas dus à des effets secondaires de ces derniers dans la matière environnante et dont l'origine ne peut pas être attribuée à l'autoionisation.

Notre résultat est à rapprocher de celui de M. Duquesne [D 1] qui observe que dans un cas sur 1000, le ^{32}P émet, simultanément avec les rayons β, des électrons dont l'énergie est suffisante pour franchir la paroi de ses compteurs (1 mg/cm² de matière plastique).

Conclusion. — L'ensemble des mesures connues jusqu'à présent permet de conclure que la théorie de Migdal et Feinberg donne l'ordre de grandeur convenable des phénomènes d'autoionisation et d'autoexcitation.

Les incertitudes liées aux approximations du calcul théorique et celles qui sont dues aux difficultés expérimentales semblent encore être d'importance comparable.

Nos résultats relatifs à ^{32}P obtenus avec les compteurs 2 π proportionnels montrent qu'il est possible, en perfectionnant certains des éléments de notre méthode, d'étudier ces effets avec une précision bien supérieure. Il nous apparaît qu'il serait nécessaire :

1° d'utiliser des compteurs 2 π de grandes dimensions afin que les rayons β perdent dans le gaz une énergie nettement supérieure à celle des rayonnements étudiés. Cela permettrait de travailler à de basses pressions pour déterminer l'influence éventuelle des effets secondaires dans le gaz;

2° de choisir une forme de compteurs permettant une nette amélioration de la résolution en énergie. La réalisation d'un appareillage remplissant en grande partie ces conditions a été entreprise, en collaboration avec M. Suzor, au laboratoire de Synthèse atomique d'Ivry.

La méthode présente l'avantage d'être bien adaptée à l'étude des atomes légers pour lesquels les phénomènes envisagés sont les plus importants (loi en Z^{-2}). Elle peut fournir le spectre des électrons éjectés.

Elle peut permettre la séparation des effets d'autoionisation et d'autoexcitation.

L'interprétation des résultats ne dépend pas de la connaissance précise des rendements de fluorescence.

Elle nécessite l'emploi de sources de faibles intensités ($<$ 1/10e de microcurie), ce qui facilite la réalisation de sources minces uniformes, condition essentielle pour l'étude d'électrons dont le parcours est souvent de quelques centaines de couches atomiques seulement.

Intervention de M. Valadares. — La remarque que je vais faire concerne exclusivement le cas de l'autoionisation accompagnant la capture électronique.

S'il y a seulement capture K on aura à la suite un réarrangement du cortège électronique avec une transition, par exemple, $K \to L$ à laquelle correspondra un photon d'énergie $h\nu$. Au contraire, s'il y a eu capture K et autoionisation K (c'est le cas considéré dans les expériences de coïncidences de M. Charpak) on aura d'abord la transition $KK \to KL$ à laquelle correspondra un photon d'énergie $h\nu' \neq h\nu$ et ensuite la transition $KL \to LL$ mettant en jeu l'énergie $h\nu'' \neq h\nu' \neq h\nu$. Par conséquent, à l'autoionisation accompagnant la capture K correspondra l'émission de deux photons d'énergies différentes de l'énergie du photon émis lorsqu'il y a seulement capture K, c'est-à-dire, d'une façon plus générale, il y aura l'émission de deux spectres de fluorescence qui ne coïncident pas avec le spectre de rayons X. J'aimerais savoir si, dans les expériences de M. Charpak, on pourrait déceler, par la méthode d'absorption sélective, ces différences d'énergie.

En effet, si l'on pouvait employer une technique suffisamment raffinée pour mettre en évidence ces différences spectrales (comme on réussit à le faire en spectrographie de rayons X) on pourrait alors employer pour l'étude de l'autoionisation même des éléments à capture électronique accompagnée de conversion interne. Il est bien évident qu'une telle expérience sera difficile vu que le phénomène d'autoionisation est un phénomène rare.

Intervention de M. Halban. — Il est très encourageant d'apprendre que le problème de la distribution de matière dans une source obtenue par évaporation d'une goutte soit résolu.

D'autre part je voudrais savoir sur quel fait l'accord apparent entre théorie et expérience (*fig.* 5) est basé. Est-ce qu'il est basé sur la discontinuité à 2 keV, ou est-ce que la courbe en pointillé est normalisée à 5 keV ?

Réponse de M. Charpak. — L'accord n'est pas basé sur la discontinuité vers 2 keV, notre précision n'étant pas suffisante pour cela. Il est basé sur le fait qu'entre 1 et 5 keV le nombre d'électrons observés est en accord avec la théorie. La courbe théorique représentée est ajustée pour 5 keV à la valeur expérimentale.

Intervention de M. Radvanyi. — Est-ce qu'une modification de la distribution actuellement prévue pour le spectre continu γ pourrait expliquer ou affecter l'écart observé pour les énergies très faibles ?

Réponse de M. Charpak. — Au-dessus de 5 keV, l'influence relative du rayonnement de freinage interne est faible par rapport au nombre d'impulsions en coïncidence observées.

Au-dessous de 5 keV, l'étude de l'absorption dans l'aluminium des rayonnements en coïncidence, les compteurs fonctionnant en proportionnel, montre que la majeure partie des coïncidences observées est due à des électrons et non à des photons et cela confirme par conséquent notre évaluation de l'effet des photons de freinage interne.

BIBLIOGRAPHIE.

Théorie.

[*b* 1] Benoist-Geutal P. — *Thèse*, Paris; *Ann. Physique*, 1953, **8**, 593.
[*f* 1] Feinberg E. M. — *J. Phys. U. R. S. S.*, 1941, **4**, 424.
[*l* 1] Levinger J. S. — *Phys. Rev.*, 1953, **90**, 11; *Thèse*, Cornell Univ., 1948.
[*m* 1] Migdal A. — *J. Phys. U. R. S. S.*, 1941, **4**, 449.
[*p* 1] Primakoff H. et Porter F. T. — *Phys. Rev.*, 1953, **89**, 930.
[*s* 1] Schwartz H. L. — *J. Chem. Phys.*, 1953, **21**, 45.
[*s* 2] Serber R. et Snyder H. S. — *Phys. Rev.*, 1932, **87**, 152.
[*w* 1] Winther A. — *Kgl. Dansk. Videnskab. Selskab. Mat. Fys. Medd.*, 1952, **27**, 3.

Expérience.

[B 1] Boehm F. et Wu C. S. — *Phys. Rev.*, 1954, **93**, 518.
[B 2] Bruner J. — *Phys. Rev.*, 1951, **84**, 282.
[B 3] Burhop. — The Auger effect, Cambridge Monog. Series, 1952.
[C 1] Charpak G. — *C. R. Acad. Sc.*, 1953, **237**, 243.
[C 2] Charpak G. et Suzor F. — *J. Physique Rad.*, 1952, **13**, 11.
[C 3] Charpak G. et Suzor F. — *C. R. Acad. Sc.*, 1953, **236**, 481.
[C 4] Charpak G. et Suzor F. — *J. Physique Rad.*, 1954, **15**, 378.
[D 1] Duquesne M. — *C. R. Acad. Sc.*, 1953, **236**, 598 et Communication privée.
[H 1] Howland et Rubinson. — *B. A. P. S.*, 1953.
[M 1] Madansky L. et Rasetti F. — *Phys. Rev.*, 1951, **83**, 187.
[N 1] Novey T. B. — *Phys. Rev.*, 1953, **89**, 672.
[P 1] Perlman M. L. et Miskel J. A. — *Bull. Amer. Phys. Soc.*. 1954, **29**, 24.
[P 2] Porter F. T. et Hotz H. P. — *Phys. Rev.*, 1953, **89**, 938.
[R 1] Renard G. A. — *C. R. Acad. Sc.*, 1954, **238**, 1991.
[W 1] Wexler S. et Davies T. H. — *Phys. Rev.*, 1952, **88**, 1203.

FREINAGE INTERNE ACCOMPAGNANT LA CAPTURE ÉLECTRONIQUE

Par R. J. GLAUBER et P. C. MARTIN,
Harvard University, Cambridge, Mass.

Summary. — The shape of the continuous γ-ray spectrum accompanying orbital electron capture has been computed taking Coulomb effects into account. Up to several times the characteristic X-ray energy, radiative capture of *p*-electrons is more probable than that of *s*-electrons. The large quantity of low frequency radiation is in agreement with experiment.

Le spectre continu du rayonnement γ accompagnant la capture d'électron orbital a récemment été mesuré pour quelques radioéléments [1], [2], [3]. Les spectres expérimentaux ont été comparés aux spectres théoriques de la forme $x(1-x)^2$ $\left(\text{avec } x = \frac{E_\gamma}{E_{\max}}\right)$ obtenus par Morrison et Schiff [4] à partir d'hypothèses très simplifiées. Pour les faibles énergies, l'intensité du rayonnement γ observée est alors beaucoup plus grande que celle prédite par la théorie; en particulier dans le cas du ^{55}Fe, ^{131}Cs, ^{71}Ge pour des valeurs de l'énergie voisines de celle du rayonnement X caractéristique, on observe une augmentation brusque de l'intensité lorsque l'énergie diminue. De telles déviations par rapport au spectre en $x(1-x)^2$ sont en fait prévisibles; en effet, ce n'est que pour des énergies beaucoup plus grandes que celles considérées que sont quantitativement valables les hypothèses de Morrison et Schiff : effets coulombiens et capture autre que la capture K négligeables.

On indiquera comment en évitant ces approximations on peut, sans difficulté, déterminer assez exactement la forme du spectre du rayonnement γ de freinage interne. En particulier, on peut traiter avec précision les effets du champ coulombien; dans ce cas le spectre du rayonnement M 1 accompagnant la capture K est alors donné pour toutes les énergies par $x(1-x)^2$. On va montrer que la partie principale du rayonnement γ de faible énergie supplémentaire observé est alors du type E 1 et provient de la capture d'électrons p.

On supposera que la capture correspond à une transition permise; la forme la plus générale de l'élément de matrice est alors donnée par

$$H_C = \sum_\lambda C^{(\lambda)} \langle T_\mu^{(\lambda)} \rangle (\bar{\chi}(0)\, T_\mu^{(\lambda)} \psi(0)), \qquad (1)$$

où

$\psi(0)$ et $\chi(0)$ sont les fonctions d'onde de l'électron et du neutrino évaluées au noyau;

$C^{(\lambda)}$ sont les coefficients pour les différents opérateurs β : $T_\mu^{(\lambda)}$;

$\langle T_\mu^{(\lambda)} \rangle$ est un élément de matrice nucléaire.

Pour la transition, avec émission du rayonnement de freinage, d'un électron de l'état $\psi_i(\mathbf{r})$ à l'état $\psi_f(\mathbf{r})$ l'élément de matrice habituel s'écrit (¹) :

$$(H_R)_{fi} = -e\left(\frac{2\pi}{k}\right)^{\frac{1}{2}} \int \bar{\psi}_f(\mathbf{r})\, e_\mu \gamma_\mu\, e^{-i\mathbf{k}.\mathbf{r}} \psi_i(\mathbf{r})\, d\tau, \quad (2)$$

où $\mathbf{k}$ et $\mathbf{e}$ sont les vecteurs de propagation et de polarisation du photon émis. Le phénomène étudié associe les processus de capture électronique et d'émission de rayonnement; un électron orbital initialement dans l'état s ou p émettra un photon pendant une transition virtuelle à l'état s et sera alors capturé par le noyau. Néanmoins les transitions virtuelles vers des états s déjà occupés dans l'atome sont interdites par le principe d'exclusion; on peut montrer que l'absence de ces termes dans la sommation sur les états intermédiaires est précisément compensée par d'autres termes correspondant à des transitions dans lesquelles la capture d'un électron d'un état occupé précède la transition « radiative ».

L'élément de matrice total correspondant au processus de capture « radiative » laissant vide un état initiallement $\psi_n(\mathbf{r})$ (avec $E_n < 0$), s'écrit finalement à partir de (1) et (2) :

$$M = \frac{ie}{m}\left(\frac{2\pi}{k}\right)^{\frac{1}{2}} \sum C^{(\lambda)} \langle T_\mu^{(\lambda)} \rangle \times \int (\bar{\chi}(0)\, T_\mu^{(\lambda)} G_{E_n-k}(0, \mathbf{r})) \times e^{-i\mathbf{k}.\mathbf{r}}\, e_\eta \left(\partial_\eta - \frac{1}{2}\sigma_{\eta\rho} k_\rho\right) \psi_n(\mathbf{r})\, d\tau, \qquad (3)$$

où

$$\sigma_{\eta\rho} = \frac{i}{2}[\gamma_\eta, \gamma_\rho] \quad \text{et} \quad k_\rho = (\mathbf{k}, k).$$

La fonction $G_{E_n-k}(0, \mathbf{r})$ est la fonction de Green

(¹) On utilise des unités pour lesquelles $h = 1$, $c = 1$.

pour l'équation de Dirac du second ordre; elle contient implicitement la sommation sur les états intermédiaires. Avec une approximation suffisante pour le problème envisagé, on peut remplacer cette fonction par la fonction de Green non-relativiste pour la propagation d'un électron avec une énergie $E_n - k$ dans un champ de Coulomb; cette dernière fonction est définie à partir des fonctions d'onde coulombiennes $\varphi_j(\mathbf{r})$ de la manière suivante :

$$G_{E_n-k}(0, \mathbf{r}) = \sum \frac{\varphi_j(0)\,\varphi_j^*(r)}{E_j - E_n + k}. \qquad (4)$$

Puisque cette expression possède la symétrie sphérique par rapport à l'origine, on peut facilement l'évaluer en résolvant l'équation radiale correspondante de Schrödinger. Le fait d'obtenir une forme particulièrement simple pour les fonctions de Green coulombiennes vient de ce que la capture d'électron se profuit nécessairement au centre des forces.

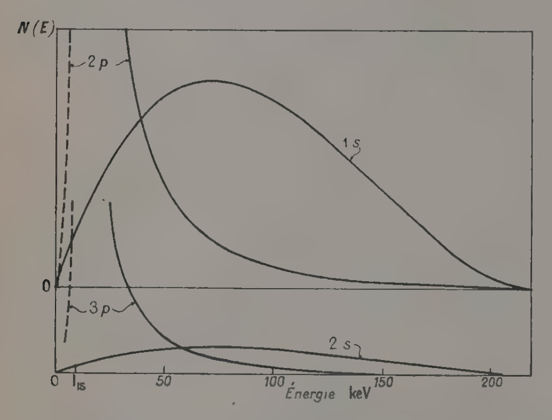


Fig. 1. — Spectres des rayonnements γ pour la capture « radiative » pour les différentes couches électroniques dans le cas du ^{55}Fe. La région des raies X caractéristiques se trouve en dessous de la discontinuité K, $I_1 s$.

On trouve que la solution contient une fonction de Whittaker et possède la représentation intégrale suivante :

$$G_{E_n-k}(0, \mathbf{r}) = \left(\frac{m\beta}{\pi}\right) e^{-\beta r} \int_0^\infty e^{-2\beta r u} \left(\frac{1+u}{u}\right)^{\frac{Z}{\beta a_0}} du \quad (5)$$

pour $k - E_n < Z^2$ Rydbergs, où $\beta = \sqrt{2m(k - E_n)}$ et a_0 est le rayon de Bohr. Avec l'expression (5), on peut effectuer analytiquement les intégrations nécessaires pour obtenir les éléments de matrice (3). Les spectres de rayonnement γ accompagnant la capture pour les différentes couches électroniques caractéristiques ont été calculés (*fig.* 1) dans le cas du ^{55}Fe pour lequel l'énergie libérée est 220 keV [1]. Les spectres pour la capture à partir des états s, mis à part leur légère différence d'énergie maximum, ont la forme générale $x(1 - x)^2$; les spectres correspondant aux états p ont une intensité très faible aux grandes énergies, mais extrêmement intense près des raies X caractéristiques. Les processus responsables de l'intensité du rayonnement γ dans les pics sont ceux correspondant à la capture d'un électron s suivie par une transition « radiative » à partir d'un état p supérieur. Ils diffèrent du processus normal et très probable de capture suivie d'émission de rayons X caractéristiques, par le défaut de conservation de l'énergie dans les états intermédiaires. Les spectres pour les états p de la figure 1 peuvent, en fait, être considérés comme représentant les limites extrêmes des raies X caractéristiques.

Pour une énergie de transition donnée, les intensités des spectres pour les états p augmentent, par rapport à celles des états s, à peu près comme le carré de la charge nucléaire. Par conséquent, pour ^{71}Ge et ^{131}Cs, la contribution des états p devrait dominer sauf dans la partie la plus énergique des spectres; les résultats expérimentaux [2] sont en accord avec ces conclusions.

L'effet d'écran du champ de Coulomb diminuera un peu les intensités des spectres correspondant aux couches $n = 2$ et 3, et sera considéré dans la comparaison quantitative avec l'expérience.

Cette étude peut également être appliquée aux transitions interdites qui seront caractérisées en général par des formes de spectres différentes. La capture du ^{55}Fe, avec $\log ft = 6{,}1$, est évidemment permise, mais tout à fait défavorisée, comme on peut le déduire du modèle en couches puisque $\Delta L = 2$.

Une analyse détaillée des méthodes utilisées comprenant une étude des effets d'écran est en préparation.

Nous désirons remercier le Docteur T. Berlin qui a attiré notre attention sur ce problème.

BIBLIOGRAPHIE.

[1] MADANSKY L. et RASETTI F. — *Phys. Rev.*, 1954, **94**, 407.
[2] SARAF B. — *Phys. Rev.*, 1954, **94**, 642. (Un article sur ^{71}Ge est aussi sous presse.)
[3] EMMERICH W., SINGER S. et KURBATOV J. — *Phys. Rev.*, 1954, **94**, 113.
[4] MORRISON P. et SCHIFF L. I. — *Phys. Rev.*, 1940, **58**, 24.

MISE EN ÉVIDENCE DE QUELQUES RAIES DE RÉARRANGEMENT CONSÉCUTIF A L'AUTOIONISATION SUIVANT LA DÉSINTÉGRATION β

Par G.-A. RENARD,

Physique et Chimie nucléaires, Collège de France, Paris.

Summary. — Measurements, by proportional counting, of the K X-rays of ^{32}P, K and L of ^{90}Sr — ^{90}Y, in equilibrium, L and M of RaE, following autoionisation; most of the values obtained are compatible with theoretical values.

1. **Introduction.** — Lors de la désintégration β, on peut observer divers effets secondaires, entre autres, l'interaction du champ du noyau et du rayon β donne lieu à l'émission d'un spectre continu de photons, c'est l'effet de freinage interne (innere Bremsthralung). Le changement brusque de charge du noyau lors de la désintégration β perturbe le cortège électronique, dont les électrons peuvent être excités à un niveau inoccupé ou ionisés dans le continu. Les places vacantes sont alors remplies par des électrons des couches externes et l'on observe l'émission soit de raies X soit d'électrons Auger. On a un double effet d'autoexcitation et d'autoionisation.

Je me suis proposé l'étude des photons de très basses énergies émis lors de la désintégration de nuclides β^- purs.

On doit s'attendre à observer un spectre continu de freinage et surimposé les raies de réarrangement.

Je ne parlerai ici que des résultats concernant l'autoionisation. Je ne rappellerai pas la bibliographie qui a été donnée dans de précédentes Communications.

2. **Méthode du compteur proportionnel.** — A. *Dispositif expérimental.* — Le dispositif expérimental, représenté schématiquement sur la figure 1, a déjà été décrit [1]. Il se compose d'un compteur proportionnel cylindrique qui reçoit, perpendiculairement à son fil, un fin pinceau de rayonnement; la source et le canaliseur sont placés dans le vide; les rayons β sont déviés par un champ magnétique, et seule la composante photonique pénètre dans le compteur, par une fenêtre de formvar de 1 mg/cm². La source voit la fenêtre sous un angle solide de $\frac{\Omega}{4\pi} = (3{,}55 \pm 0{,}20) \cdot 10^{-5}$. La technique des mesures et le dépouillement des résultats sont les mêmes que dans le travail déjà cité [1].

B. *Mesures.* — Les corps radioactifs utilisés ont été le ^{32}P, le ^{90}Sr → ^{90}Y en équilibre et le RaE.

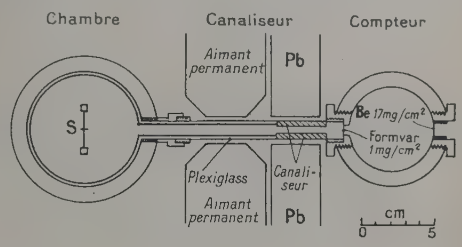


Fig. 1.

Dans le cas du ^{32}P, plusieurs sources et plusieurs remplissages de gaz différents et à diverses pressions

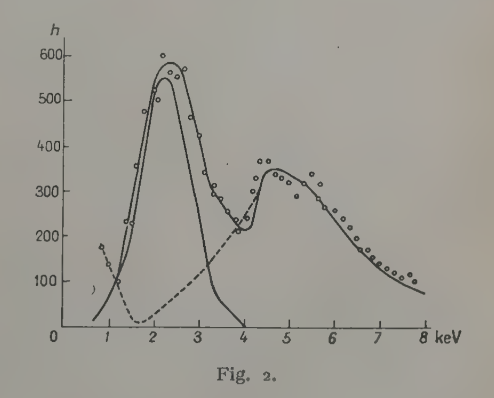


Fig. 2.

ont été utilisés. On observe, dans tous les cas, un pic dont l'énergie 2,3 keV correspond à l'énergie des raies K du S, atome final. Dans une expérience préliminaire, la source était constituée par une goutte de solution de ^{32}P sans entraîneur, évaporée

sur un support de LC 600 de 50 μg/cm², le compteur était rempli de krypton à une pression de 38 cm de Hg; la surface moyenne du pic représente une intensité de $4{,}5.10^{-4}$ photon K par rayon β (*fig.* 2). J'ai utilisé ensuite une source évaporée thermiquement sous vide; dans ces conditions la surface moyenne des pics est de $3{,}4.10^{-4}$ photon par rayon β

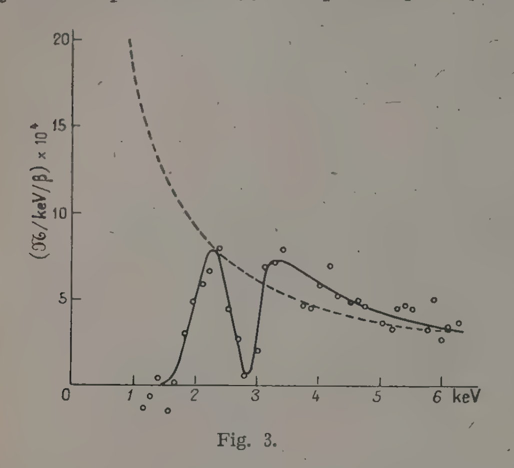


Fig. 3.

dans le cas d'un remplissage d'argon (*fig.* 3) et de $4{,}8.10^{-4}$ photon par rayons β dans le cas d'un remplissage de krypton (*fig.* 4).

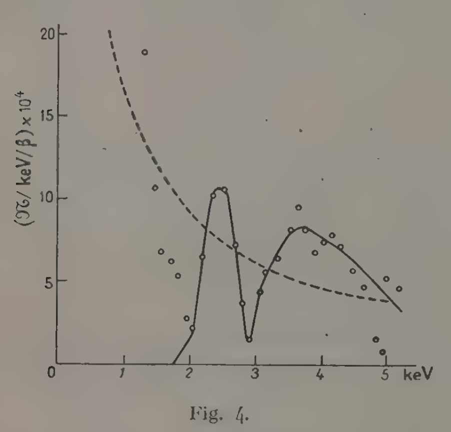


Fig. 4.

Avec la source de ^{90}Sr → ^{90}Y en équilibre, on observe les pics K et L. La valeur moyenne obtenue pour le pic K est de $3{,}9.10^{-4}$ photon K par rayon β, et pour le pic L de $\sim 1{,}5.10^{-5}$ photon L par rayon β avec une grande imprécision pour cette dernière valeur (*fig.* 5).

En ce qui concerne le RaE, on observe les pics L et M. Chaque pic L donne une valeur de 2.10^{-4} photon L par rayon β. Soit au total 4.10^{-4} photon L par rayon β et le pic M donne une valeur de $1{,}46.10^{-4}$ photon par rayon β (*fig.* 6).

C. *Erreurs.* — Dans le cas du ^{32}P, les barres d'erreurs portées sur les figures représentent l'écart-étalon. Pour le ^{94}Sr → ^{90}Y et le RaE les erreurs

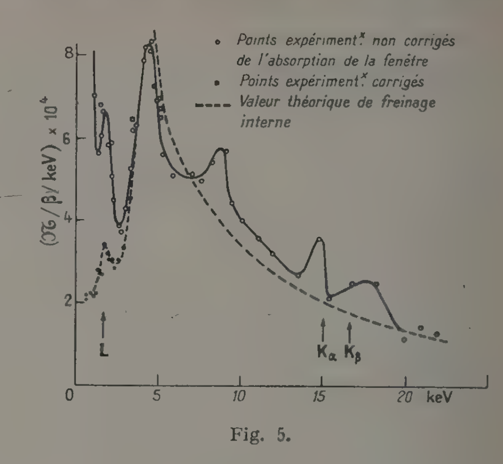


Fig. 5.

statistiques ne dépassent pas 8 pour 100. Les mesures absolues des sources sont à 10 pour 100 près. L'erreur sur l'angle solide est estimée à 5 pour 100. On ne peut évaluer l'erreur faite en utilisant l'efficacité calculée du compteur pour normaliser les résultats.

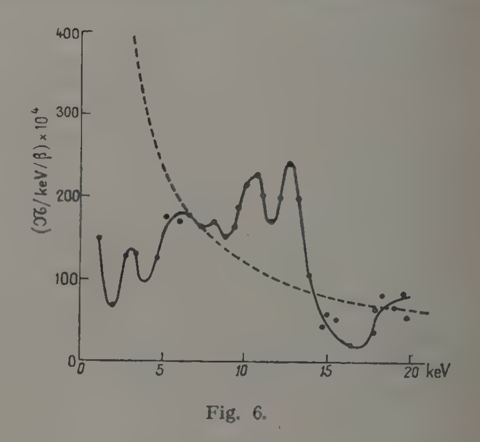


Fig. 6.

L'erreur faite sur les valeurs calculées de la transmission de la fenêtre est petite car j'ai vérifié que l'absorption expérimentale du rayonnement dans des feuilles de formvar était en accord avec l'absorption calculée. Cependant, au-dessous de 2 keV, l'absorption du rayonnement par la fenêtre devient rapidement totale, et il en résulte que les valeurs expérimentales sont d'autant plus imprécises que l'énergie du pic correspondant est plus faible.

3. **Comparaison des résultats expérimentaux avec la théorie.** — Pour comparer les résultats expérimentaux avec les valeurs théoriques, il faut

TABLEAU I.

Nuclides.	Raies.	Énergie (keV).	$\left(\frac{\mathcal{N}_{photon}}{\beta}\right).10^4$.	ω.	$\left(\frac{\mathcal{N}'_{autoionisation}}{\beta}\right).10^4$ expérimental.	théorique Migdal.	Levinger.	Schwartz.
^{32}P	K	2,3	4,2 (*)	0,0555	75	23,8	36-38 (**)	26
^{90}Sr → ^{90}Y	K	~ 15	3,9	0,67	5,8	3,9	5,9	4,25
	L	~ 2	0,15	0,0365	5	43,5	50	14,5
RaE	L	~ 11	4	0,44	9,1	9,6	11	3,2
	M	~ 2,5	1,46	0,05 (***)	29	20	–	6

(*) Valeur moyenne.
(**) En utilisant la fonction de Hartree.
(***) Valeur estimée.

remonter au nombre d'autoionisation par rayon β et, pour cela, tenir compte de la valeur du facteur de fluorescence. J'ai utilisé les valeurs données par la relation semi-empirique de Burhop [2] pour les couches K et L; et pour la couche M la seule valeur expérimentale étant celle de Lay en 1934 qui donne $\omega_M = 0{,}06$ pour l'uranium, j'ai estimé le facteur de fluorescence pour $Z = 84$ et la couche M à 0,05.

Dans le tableau I, j'ai comparé les résultats expérimentaux et les valeurs théoriques [3], [4], [5].

Parmi les quelques résultats expérimentaux déjà publiés concernant l'autoionisation, seules deux valeurs obtenues pour la couche L du RaE peuvent être comparées à la valeur obtenue dans ce travail; Gray [6] donne $\sim 11.10^{-4}$ photon $\frac{L}{\beta}$, Boehm et Wu [7] $(6 \pm 3).10^{-4}$ photon $\frac{L}{\beta}$, alors que j'obtiens $9{,}1.10^{-4}$ photon $\frac{L}{\beta}$.

Tenant compte des imprécisions expérimentales et des approximations théoriques, on peut conclure qu'il n'y a pas, actuellement, de désaccord théorie-expérience.

Intervention de M. Sliv. — Il est préférable de ne pas séparer les résultats numériques de Levinger de ceux de Migdall qui sont obtenus tous deux à partir de la même base théorique, les calculs de Levinger étant plus précis.

BIBLIOGRAPHIE.

[1] RENARD G. A. — *J. Physique Rad.*, 1953, **14**, 361.
[2] BURHOP E. H. S. — The Auger Effect, Cambridge monographs on physics, 1952.
[3] MIGDAL A. — *J. Phys. exp. et théo.*, U. R. S. S., 1941, **11**, 207.
[4] LEVINGER J. S. — *Phys. Rev.*, 1953, **90**, 11.
[5] SCHWARTZ H. M. — *J. Chem. Phys.*, 1953, **21**, 45.
[6] GRAY. — *Phys. Rev.*, 1939, **55**, 586.
[7] BOEHM F. et WU C. S. — *Phys. Rev.*, 1954, **93**, 518.

FREINAGE INTERNE ET IONISATION ATOMIQUE ACCOMPAGNANT L'ÉMISSION β DE ^{90}Y ET RaE

Par A. MICHALOWICZ et R. BOUCHEZ,
Institut du Radium, Laboratoire Curie, Université de Paris.

Summary. — With the aid of a NaI (Tl) scintillation spectrometer the internal Bremsstrahlung and the atomic ionisation for the forbidden transitions ^{90}Y and RaE have been studied. The results on the Bremsstrahlung are in accord with the simplified theory of Knipp and Uhlenbeck; those on the K ionisation with the formula of Levinger $\frac{0.92}{Z^2}$ while that of Migdal $\frac{0.64}{Z^2}$ gives a value too small.

Introduction. — L'ionisation atomique [1] à [4] accompagnant l'émission β⁻ a encore été peu étudiée expérimentalement. La principale méthode convenable pour cette étude consiste dans la détection des rayonnements X de réarrangement; les photons X dus à l'ionisation atomique ont été récemment mis en évidence d'une part dans le cas du ^{32}P par Renard [5], d'autre part dans le cas du ^{147}Pm et du RaE par Boehm et Wu [6].

L'étude quantitative précise de ce phénomène très peu intense est délicate, l'intensité de l'ionisation variant comme $\frac{1}{Z^2}$. En outre, le facteur de fluorescence étant faible pour les atomes légers, il existe une région moyenne ($Z \simeq 30$) pour laquelle l'intensité du rayonnement X de réarrangement est maximum.

Dans le cas du ^{32}P, Renard [5] observe environ $0,45.10^{-3}$ photon K du soufre par désintégration β, soit $7,5.10^{-3}$ ionisations K par β (en utilisant $W_K \simeq 6$ pour 100 d'après Burhop); résultat d'un ordre de grandeur comparable avec ceux de la relation de Migdal [1] et de Levinger [4] donnant respectivement $2,5.10^{-3}$ et $3,6.10^{-3}$.

Pour le ^{147}Pm et le RaE, Boehm et Wu [6] observent des résultats quantitatifs en bon accord avec la théorie; toutefois la précision obtenue ne leur permet pas de déterminer quelle est la relation, de Migdal ou de Levinger, qui convient le mieux.

Dans l'étude actuelle, on a repris la mesure de l'intensité de l'ionisation atomique du RaE avec un spectromètre à scintillations de très bonne résolution. En outre, nous avons étudié le cas de ^{90}Y et ^{90}Sr plus favorable que le RaE ou même le ^{147}Pm : on a mis en évidence le rayonnement X d'ionisation K de ^{90}Sr + ^{90}Y et mesuré son intensité.

Dispositif expérimental. — Le dispositif expérimental (*fig.* 1) comprend un photomultiplicateur d'électrons type E. M. I. 6262 protégé par un blindage de plomb. On utilise un cristal d'INa (Tl) de 2 cm d'épaisseur, couvert du côté rayonnement par un écran de 20 μAl. Le canaliseur de plomb est recouvert entièrement de Cu pour éviter l'excitation

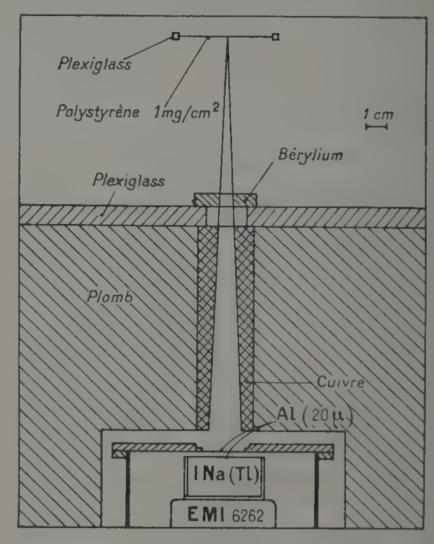


Fig. 1. — Schéma du dispositif expérimental (spectromètre à scintillations).

du rayonnement X du plomb qui perturberait les mesures. Pour diminuer au maximum le freinage externe, on arrête le rayonnement β dans un écran de Be pur; en outre, on a disposé sur le blindage de Pb, du côté source, un écran de plexiglas; enfin les sources très minces sont déposées sur des supports minces de polystyrène de 1 mg/cm² et éloignées de toute matière. Le rayonnement de freinage externe créé dans le plexiglas est faible et pratiquement réabsorbé par le plomb; on a calculé que le rayonnement γ de freinage externe créé dans le Be et

atteignant le cristal est de l'ordre de 1 pour 100 du rayonnement de freinage interne accompagnant l'émission β.

Les impulsions du compteur à scintillations, après avoir été amplifiées par un amplificateur Mesco linéaire jusqu'à 150 V sont analysées par un sélecteur C. E. A. à un canal. Le bruit de fond du photomultiplicateur se trouve à moins de 2 keV, le tube non refroidi est porté à une tension d'environ 1000 V.

Étalonnage et résolution du spectromètre à scintillations. — L'ensemble de l'installation est étalonné au point de vue linéarité et résolution à l'aide des rayonnements du ^{55}Fe (6 keV), ^{71}Ge (9,5 keV); ^{103}Pd (20 et 40 keV), ^{137}Cs (32 keV), ^{203}Hg (73 et 278 keV), ^{22}Na (511 keV) pour le domaine des énergies utilisées dans cette expérience.

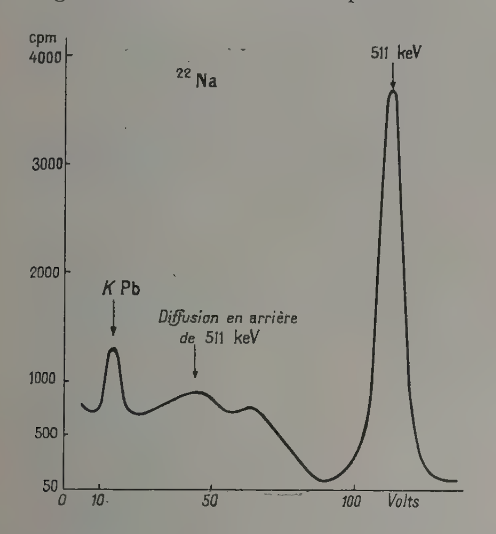


Fig. 2. — Spectre du rayonnement d'annihilation du ^{22}Na.

On a trouvé que le spectromètre était linéaire à mieux de 1 pour 100 et possédait une très bonne résolution. On a indiqué sur la figure 2 le spectre d'étalonnage obtenu avec une source de ^{22}Na dans laquelle les positons sont entièrement annihilés; le pic photoélectrique de 511 keV possède une largeur relative à hauteur moitié $\frac{\Delta E}{E}$ d'environ 7,5 pour 100. Dans la figure 3, on a tracé la courbe de résolution du spectromètre qui correspond sensiblement à la loi $\frac{\Delta E}{E} = 1{,}6\, E^{-\frac{1}{2}}$ en posant que la largeur de la raie provient pour 75 pour 100 de la fluctuation statistique du nombre de photoélectrons, on trouve que pour chaque kiloélectron-volt abandonné dans le cristal 1,6 électron sont éjectés de la photocathode.

Enfin, on a déterminé avec précision l'efficacité du compteur à scintillations en fonction de l'énergie; jusqu'à 100 keV cette efficacité est pratiquement 100 pour 100 à l'absorption près dans les deux

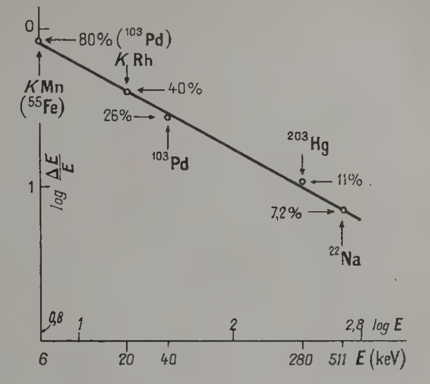


Fig. 3. — Résolution du spectromètre à scintillations en fonction de l'énergie.

fenêtres d'Al ($\simeq$ 11 mg/cm^2) couvrant le cristal et fermant la boîte du tube.

Résultats expérimentaux. — 1. ^{90}Y. — On a utilisé pour l'étude du freinage interne une source pure sans matière de ^{90}Y et, pour l'étude de l'ionisation atomique, le produit en équilibre de ^{90}Sr + ^{90}Y qui avait servi à l'extraction précédente de ^{90}Y. Les sources ont été préparées par M. Lederer après purification par chromatographie sur papier et leur intensité atteignait 4 mC.

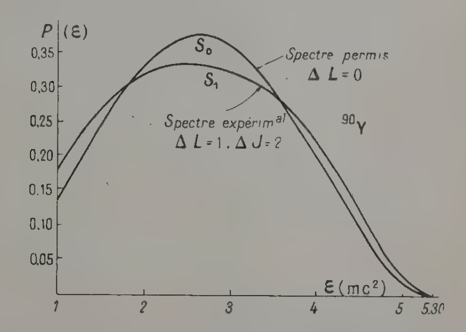


Fig. 4. — Spectre β permis et expérimental de ^{90}Y. Les surfaces des spectres sont égales à une unité.

On a indiqué sur les figures 6 et 7 et tableaux I et II les résultats expérimentaux obtenus pour le freinage interne et l'ionisation *K*.

Pour le freinage interne, la comparaison avec la théorie a été effectuée en utilisant les résultats de la méthode approchée de Knipp et Uhlenbeck qui diffèrent très peu de la méthode plus rigoureuse utilisant la théorie des perturbations avec états intermédiaires. L'analyse de ce calcul est représentée sur les

figures 4, 5 *a* et 5 *b* : on voit que l'intensité du rayonnement γ de freinage d'énergie k, en fonction de l'énergie des électrons qui ont émis ce rayonnement dépend de la forme du spectre β, mais l'intégration sur toutes les énergies possibles des électrons,

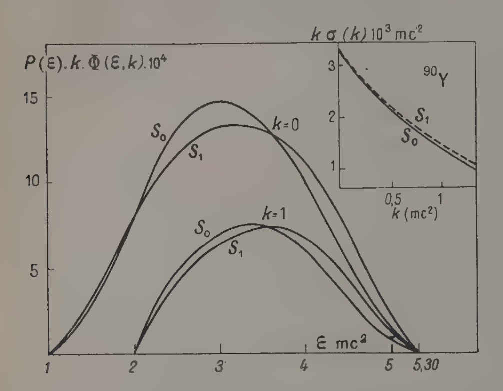


Fig. 5*a* et 5*b*. — La forme de la distribution de $P(\varepsilon)k\Phi(\varepsilon\ k)$ en fonction de ε dépend de la forme du spectre β. Mais l'intégrale sur l'énergie ε de l'électron conduit à une forme du spectre de freinage qui ne change pas sensiblement avec la forme du spectre β.

de $1 + k$ à ε_0, fait disparaître pratiquement dans le cas de ^{90}Y les différences dues à la forme du spectre β. On ne peut donc se servir ni de la forme du spectre de freinage, ni de son intensité totale pour obtenir des renseignements sur la nature de la désintégration β de ^{90}Y. Si l'on désirait obtenir de tels renseignements il faudrait, par exemple, étudier l'intensité de photons de freinage de 500 keV environ en fonction de l'énergie des électrons qui les ont rayonnés.

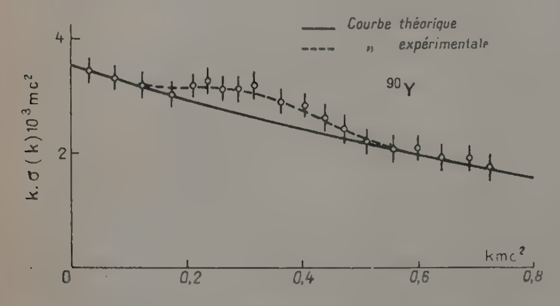


Fig. 6. — Spectre du rayonnement γ de freinage interne de ^{90}Y. L'intensité absolue mesurée du rayonnement γ de freinage interne entre 20 et 400 keV est $9,1.10^{-3}$ par désintégration β en excellent accord avec la théorie (9.10^{-3}).

Ayant étudié le freinage interne de ^{90}Y entre 20 et 400 keV et obtenu un bon accord (*fig.* 6) avec les résultats théoriques, on a analysé plus en détail la région des basses énergies à partir de 4 keV pour étudier le rayonnement K Y + K Zr émis lors de l'ionisation K de ^{90}Sr + ^{90}Y. Le freinage interne supplémentaire dû à ^{90}Sr représente seulement 10 pour 100 de celui de ^{90}Y, tandis que l'on double ainsi l'intensité du rayonnement d'ionisation K par rapport à une source de ^{90}Y seule.

Les résultats expérimentaux et la comparaison avec la théorie sont indiqués sur la figure 7. On a tracé le spectre théorique de freinage entre 4 et 50 keV sans correction et avec correction de l'absorption et de l'effet d'échappement du cristal;

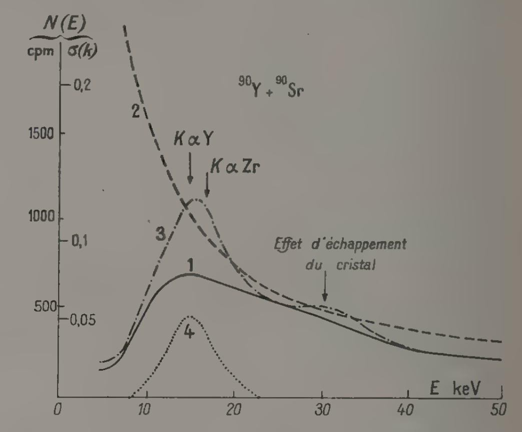


Fig. 7. — Spectre du rayonnement γ de freinage de ^{90}Y et ^{90}Sr aux basses énergies de 4 à 50 keV. Vers 15 keV, il existe un pic complexe dû aux rayonnements K Y et K Zr d'ionisation atomique accompagnant l'émission β de ^{90}Sr et ^{90}Y.

Courbe 1. ———— Courbe théorique corrigée des effets d'absorption et d'échappement.
2. — — — -- Courbe théorique du freinage interne de ^{90}Y.
3. —∘—∘—∘ Courbe expérimentale.
4. .... Rayonnement K Y et K Zr dus à l'ionisation atomique.

l'intensité du spectre théorique a été raccordée au spectre expérimental dans la région de 40 keV, l'étude précédente nous ayant montré l'accord excellent au point de vue forme et intensité qui existe à partir de cette valeur de l'énergie du rayonnement γ. On met nettement en évidence le pic d'ionisation K, comprenant les rayonnements K Y et K Zr; son intensité mesurée (tableau II) est comparée avec celle obtenue d'après les formules de Migdal et de Levinger.

2. Ra*E*. — On a utilisé 2 mC de Ra*E* sans matière et exempte de Ra*D*; l'analyse précise du spectre γ ayant montré l'absence complète de la raie de 47 keV du Ra*D*. La source de Ra*E* fut préparée par P. Conte de l'Institut du Radium, suivant la méthode de Bouissières [8]. Une séparation préliminaire Ra*E* — Ra*D* a été faite par électrolyse, le Ra*E* a ensuite été purifié par la méthode à la dithizone et déposé sur un film de polystyrène

de 1 mg/cm² par centrifugation de l'hydroxyde à l'état colloïdal.

On a indiqué sur les figures 10 et 11 et tableaux I et II les résultats obtenus pour le freinage et l'ionisation K et L.

TABLEAU I.

Intensité par (*) émission β *du rayonnement* γ *de freinage interne du* RaE *et de* ^{90}Y.

	Résultats expérimentaux.	Théorie.
^{90}Y.......	$(1,95 \pm 0,2).10^{-3}\,mc^2$	$1,85.10^{-3}\,mc^2$
RaE.....	$(0,40 \pm 0,08).10^{-3}\,mc^2$	$0,52.10^{-3}\,mc^2$ (S_0)
		$0,42.10^{-3}\,mc^2$ (S exp.)

(*) On prend pour intensité $\int_{k_1}^{k_2} k\,\sigma(k)\,dk$ en unités mc^2, entre 20 et 400 keV pour ^{90}Y et entre 25 et 250 keV pour RaE.

Pour le freinage interne on a procédé comme pour ^{90}Y et l'analyse du calcul est résumée dans les figures 8, 9 *a* et 9 *b*. L'intégration pour toutes les énergies des électrons qui rayonnent fait encore disparaître l'influence de la forme du spectre β sur la forme du spectre de freinage; toutefois, dans le

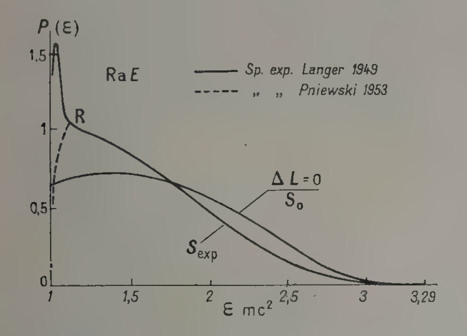


Fig. 8. — Spectre β du RaE. Pour le spectre réel on a utilisé les résultats de Pniewski en dessous de 50 keV et au-dessus de 50 keV ceux de Langer et Price. On a raccordé arbitrairement en R vers 50 keV. Les surfaces des spectres sont égales à l'unité.

cas du RaE, l'intensité du freinage est plus faible pour le spectre réel que pour le spectre permis; en effet, le spectre réel comprenant plus d'électrons mous que le spectre permis, ceux-ci donnent une plus petite contribution au freinage interne. On trouve que le spectre expérimental de freinage est en bon accord avec le spectre calculé entre 20 et 250 keV au point de vue de la forme et de l'intensité. Dans la région de 80 keV apparaît nettement le pic d'ionisation K Po; son intensité (tableau II) a été comparée avec celle obtenue à partir des formules de Migdal et Levinger.

Pour étudier l'ionisation L du RaE (*fig.* 11), on a analysé la région d'énergie de 6 à 25 keV du

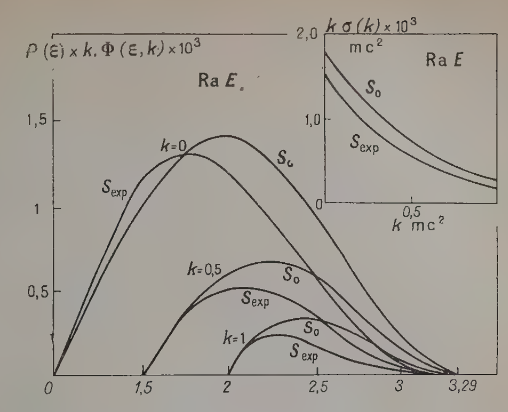


Fig. 9 *a*. — La distribution de $P(\varepsilon)\,k\,\Phi(\varepsilon, k)$ en fonction de l'énergie ε de l'électron pour le freinage interne de RaE dépend notablement de la forme du spectre β.

Fig. 9 *b*. — L'intégrale sur ε conduit à une forme du freinage interne qui ne dépend pratiquement plus de la forme du spectre β (comme dans le cas de ^{90}Y). Toutefois l'intensité du rayonnement γ de freinage par désintégration β serait plus grande pour un spectre permis So que pour le spectre interdit réel.

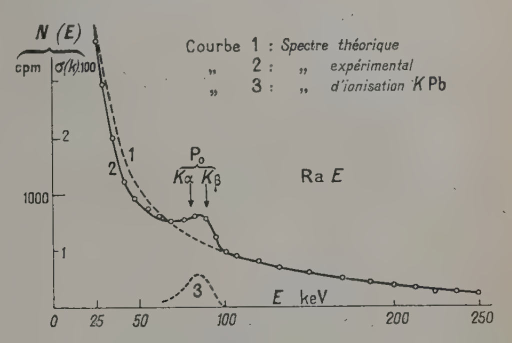


Fig. 10. — Spectre de freinage interne de 25 à 250 keV et ionisation atomique K du RaE.

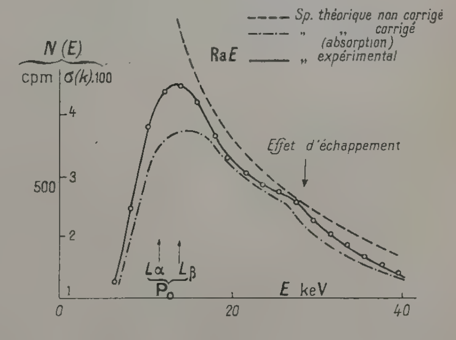


Fig. 11. — Spectre de freinage interne de 6 à 40 keV et ionisation atomique L du RaE.

freinage du RaE. Le résultat est beaucoup moins précis que pour ^{90}Y : d'une part l'intensité des

TABLEAU II.

Intensité par émission β de l'ionisation du Ra*E et* ^{90}Sr + ^{90}Y.

		$W_{K \text{ ou } L}$ (*).	Résultats expérimentaux.	Boehm et Wu.	Migdal (**).	Levinger (**).
^{90}Sr + ^{90}Y (***).	*K*........	0,68	$(13,1 \pm 1,5).10^{-3}$	–	$8,2 .10^{-4}$	$11,8 .10^{-4}$
Ra*E*.	*K*........	0,97	$(1,3 \pm 0,2).10^{-4}$	$(1,2 \pm 0,5).10^{-4}$	$0,91.10^{-4}$	$1,30.10^{-4}$
	L........	0,44	$\simeq 0,5.10^{-3}$	$(0,6 \pm 0,3).10^{-3}$	$0,96.10^{-3}$	$1,04.10^{-4}$

(*) D'après les formules empiriques de Burhop :

$$1 - W_K = \frac{1 + 1,12.10^6}{Z^4} \quad \text{et} \quad 1 - W_L = \frac{1 + 6,4.10^7}{Z^4}.$$

(**) On a pris pour l'ionisation *K* la formule $\frac{0,64}{Z^2}$ (Migdal) ou $\frac{0,92}{Z^2}$ (Levinger), *Z* étant celui du noyau final; pour l'ionisation *L* on a pris $\frac{6,8}{Z^2}$ (Migdal) ou $\frac{7,35}{Z^2}$ (Levinger).

(***) Dans un mélange ^{90}Sr + ^{90}Y en équilibre, le freinage interne de ^{90}Sr entre 20 et 400 keV représente 10 pour 100 de celui de ^{90}Y :

$$\int k\,\sigma(k)\,dk \simeq 0,19.10^{-3}\,mc^2.$$

raies *L* Po du Ra*E* ($Z = 84$) est environ six fois plus faible que celle des raies *K* Y + Zr de ^{90}Sr + ^{90}Y ($Z = 39$ et 40), compte tenu des intensités absolues des sources de Ra*E* (2 mC) et ^{90}Y (4 mC) utilisées, d'autre part, pour ces faibles énergies (L_x Po $\simeq$ 11 keV) la résolution d'une spectrométrie à scintillations est insuffisante ($\simeq$ 40 pour 100). Toutefois, le pic *L* Po d'ionisation *L* du Ra*E* est très visible et son intensité est environ 2.10^{-4} photons *L* par désintégration β du Ra*E*.

Une étude plus précise pour ce rayonnement a été effectuée à l'aide de la même source par Renard [9] au compteur proportionnel.

Intervention de M. Grace après la Communication de M. Michalowicz. — A quel effet le large renflement de la figure 6 est-il dû ?

Réponse Michalowicz. — Dans les conditions expérimentales utilisées, on trouve pour le spectre du freinage interne [$\sigma(k)$] en fonction de l'énergie [k], un excès de photons entre 50 et 250 keV; ce qui se traduit par une bosse, dans le diagramme $k\sigma(k)$ en fonction de k. Cet excès est certainement dû, en partie à du rayonnement de freinage externe, et en partie à du rayonnement diffusé dans le canalyseur.

BIBLIOGRAPHIE.

[1] MIGDAL A. — *J. Phys. exp. et théor.*, U. R. S. S., 1941, **11**, 207.
[2] BENOIST-GUEUTAL P. — *Thèse*, Paris, 1952.
[3] SCHWARTZ H. M. — *J. Chem. Physics*, 1953, **21**, 45.
[4] LEVINGER J. S. — *Phys. Rev.*, 1953, **90**, 11.
[5] RENARD G. A. — Communication Société de Physique, Paris, 1954; *C. R. Acad. Sc.*, 1954, **238**, 1991.
[6] BOEHM F. et WU C. S. — *Phys. Rev.*, 1954, **93**, 518.
[7] KNIPP J. K. et UHLENBECK G. E. — *Physica*, 1946, **3**, 425.
[8] BOUISSIÈRES G. et FERRADINI C. — *Analyt. Chim. Acta*, 1950, **4**, 610.
[9] RENARD G. A. — *Colloque C. N. R. S.* Rôle du cortège électronique dans les phénomènes radioactifs, Paris, 1954.

ETUDE EXPÉRIMENTALE DE L'IONISATION INTERNE EN ÉMISSION α

Par MICHEL RIOU,
Laboratoire Curie de l'Institut du Radium, Paris.

Summary. — A review of the results on α disintegration of ^{210}Po, the most favorable example for the observation of internal ionization; intensities of K and L rays of lead and of the γ ray of 800 keV emitted by ^{210}Po; a deduction of the experimental probabilities of internal ionization of K and L shells; comparison with theory; results on the electrons emitted by ^{210}Po.

1. Introduction. — L'observation du phénomène d'ionisation interne accompagnant l'émission α, l'émission β et la capture électronique peut se faire de trois manières :

1° Par l'observation des électrons arrachés du cortège, qui, d'après la théorie doivent former un spectre continu décroissant rapidement avec l'énergie.

2° Par l'observation des raies X caractéristiques, K, L, M, ... émises après l'arrachement d'électrons K, L, M, ...

3° Par l'observation des raies électroniques Auger émises en compétition avec les raies X.

Ces trois observations sont rendues difficiles par la faible probabilité du phénomène et par l'existence d'autres phénomènes, en général plus probables, qui peuvent masquer le phénomène cherché.

En émission α l'observation directe est facilitée puisqu'on n'est pas gêné par le spectre continu β qui masque le spectre continu d'électrons d'ionisation interne, ou par les raies X de la capture électronique se superposant à celle de l'ionisation interne, ou enfin par le spectre continu de photons (freinage interne) qui accompagne l'émission β ou la capture électronique.

Par contre la conversion interne de raies γ accompagnant l'émission α peut être gênante : les raies électroniques de conversion interne, suivant leur énergie et leur intensité, peuvent masquer plus ou moins le spectre continu d'électrons d'ionisation interne; de plus les raies X et Auger émises par conversion interne sont indistinguables de celles émises par ionisation interne. L'observation de ces dernières doit donc se faire sur des émetteurs α dont la conversion interne est très faible.

Enfin il faut réduire au maximum les effets secondaires, par exemple l'excitation des raies X par les rayons α.

2. La désintégration α de ^{210}Po. — La seule désintégration α où l'ionisation interne ait pu être nettement mise en évidence est celle de ^{210}Po :

$$^{210}_{84}\text{Po} \xrightarrow{5,3\ \text{MeV}} {}^{206}_{82}\text{Pb}\ (138\ \text{j}).$$

Ceci est dû à plusieurs faits : on peut disposer de sources de Po intenses, très bien purifiées, la période permet de poursuivre une étude sur la même source pendant plusieurs mois, on n'est pas gêné par les dérivés puisque ^{206}Pb est stable, enfin et surtout ^{210}Po n'émet, comme nous le verrons, qu'une seule raie γ de 800 keV, très peu intense et faiblement convertie, si bien que les effets de conversion interne sont nettement plus faibles que ceux d'ionisation interne.

La première étude sur les rayonnements électromagnétiques émis par ^{210}Po est celle d'Irène Curie et Frédéric Joliot, en 1931 [1] qui, par absorption dans l'aluminium et détection par chambre d'ionisation, mirent en évidence des rayonnements peu intenses, assimilables aux rayonnements L et M de Po ou Pb et signalèrent l'existence d'un rayonnement plus énergique. Nous verrons que les rayonnements L et M sont dus à l'ionisation interne.

En 1937 de Benedetti et Kerner [2], Siegbahn et Slätis [3] montrèrent par absorption des photons et par spectrographie magnétique des électrons que l'on ne pouvait attribuer à la désintégration de ^{210}Po qu'une raie γ de 770 keV. Zajac, Broda et Feather [4] donnèrent ensuite l'intensité en photons de cette raie (10^{-5} photons/α) et mirent en évidence deux autres raies de 84 et 35 keV qu'ils assimilèrent à des raies γ.

Plus récemment, Alburger et Friedlander [5] ont repris l'étude du spectre magnétique des électrons de conversion émis par ^{210}Po et des photoélectrons extraits de l'uranium par le rayonnement γ ils n'observent ainsi, entre 100 et 4 000 keV, qu'une seule raie γ d'énergie 800 ± 6 keV et obtiennent pour le rapport d'intensité des électrons de conversion dans les couches K et L la valeur $\frac{K}{L} \doteq 3,7 \pm 0,5$ (1).

Ces auteurs ont étudié par la même méthode les

(1) Les dernières valeurs théoriques de Rose (Communication au Colloque) sont les suivantes : 4,7 pour un rayonnement M (1), 3,8 pour un rayonnement E (2), 0,67 pour un rayonnement E (4).

raies γ émises lors de la réaction

$$^{206}_{83}\mathrm{Bi} \xrightarrow{\text{c. c.}} {}^{206}_{82}\mathrm{Pb}\ (6,4\ \mathrm{j})$$

qui conduit au même noyau que la désintégration de ^{210}Po. Parmi les quinze raies observées se trouve une raie de 803 keV qu'ils supposent identique à celle émise par ^{210}Po. Des études ultérieures sur ^{206}Bi [6] ont permis d'établir le schéma de niveau de ^{206}Pb représenté sur la figure 1. En principe, d'après les règles de sélection en émission α les niveaux de 803,3, 1683,8, 1998,1 et 2 384,8 peuvent être excités lors de la désintégration α de ^{210}Po, mais il est compréhensible que seul le premier ait été observé — du reste avec une très faible probabilité, de l'ordre de 10^{-5} — les autres niveaux qui ont une énergie supérieure doivent avoir une probabilité d'excitation encore beaucoup plus faible, de l'ordre de 10^{-10}, d'après la théorie.

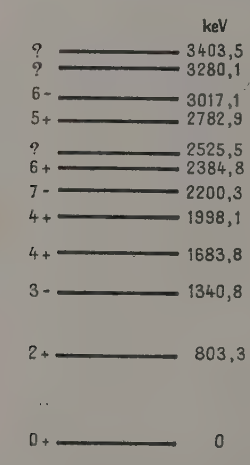


Fig. 1. — Schéma de niveaux de $^{206}_{82}$Pb (d'après Pryce [6]).

De Benedetti et Minton [7] ont pu préciser la nature du rayonnement γ de 800 keV : l'étude des coïncidences α — γ leur a permis de mettre en évidence le groupe α de 4,5 MeV qui conduit au niveau excité de 800 keV et de montrer que celui-ci se désexcite avec une période inférieure à 10^{-9} s. Ils ont également étudié les corrélations angulaires α — γ et obtenu une distribution en sin^2, 2 indiquant que le rayonnement γ est un quadripôle électrique, ce qui est à la fois compatible avec la valeur observée de $\frac{K}{L}$ et confirme la règle fixant comme niveau 2^+ le premier niveau excité d'un noyau pair-pair.

Finalement le schéma de désintégration de ^{210}Po serait celui qui est représenté sur la figure 2; l'intensité de 10^{-5} de la raie α est déduite de celle de la raie γ, sur laquelle nous reviendrons plus loin.

3. Les rayonnements électromagnétiques émis par ^{210}Po et la mise en évidence des raies K et L d'ionisation interne. — Grace, Allen, Wast et Halban [8] ont étudié en détail les rayonnements électromagnétiques au-dessus de 50 keV émis par ^{210}Po par compteurs Geiger-Müller, compteurs proportionnels et compteurs à scintillation : ils ont montré par absorption sélective que contrairement aux résultats de Zajac et al. au moins 80 pour 100 du rayonnement de 84 keV sont constitués par les raies K de Pb; ils n'ont pas observé de coïncidences entre ce rayonnement et celui de 800 keV.

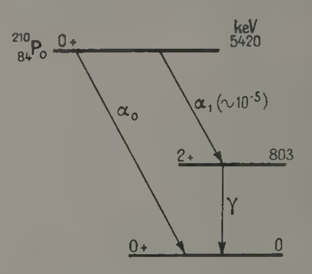


Fig. 2. — Schéma de désintégration de ^{210}Po.

J'ai repris cette étude en 1952 [9] à l'aide de compteurs Geiger-Müller à xénon de rendement élevé pour les faibles énergies ou à paroi de plomb pour les énergies élevées. J'ai utilisé une source de 11 mC déposée sur argent, puis une source de 8 mC déposée sur plexiglas, les sources étaient recouvertes d'une feuille mince pour arrêter les rayons α et éviter les effets secondaires; les électrons d'énergie supérieure à 200 keV dus à Po ou à des impuretés de Ra$D + E$ ($5 . 10^{-7}\ e/\alpha$) étaient éliminés par champ magnétique ou écran.

Les courbes d'absorption dans le cuivre m'ont permis de séparer des composantes de 12, 80 et 800 keV et l'absorption sélective a montré que les deux premières étaient constituées par les rayonnements L et K du plomb. Je n'ai observé aucun autre rayonnement électromagnétique particulièrement dans la région 15 à 100 keV, mis à part le rayonnement K de l'argent de 23 keV qui n'apparaît qu'avec la source déposée sur argent. Par ailleurs, je n'ai pas observé de coïncidence L — γ avec un temps de résolution de 0,4 μs.

Simultanément Rubinson et Bernstein [10] étudiaient par compteur proportionnel et absorption sélective le rayonnement L et concluaient aussi qu'il s'agissait du rayonnement L du plomb. Ils donnent un rapport d'intensité

$$L\alpha : L\beta : L\gamma = 1 : 0,635 : 0,12$$

concordant avec le rapport moins précis

$$L\alpha : L\beta = 1 : 0,5$$

que j'avais obtenu.

D'autre part Barber et Helm [11] ont confirmé par compteur à scintillation que le rayonnement K était celui du plomb, qu'il n'était pas en coïncidence avec le rayonnement γ, mais peut être avec le rayonnement L. Pringle et al. [13] ont montré qu'il n'y avait pas de coïncidence $K - \gamma$ pour un temps de résolution de 0,3 μs.

***

J'ai repris dernièrement l'étude par compteur à scintillation avec une source de 20 mC déposé sur nickel contenant moins de $3 \cdot 10^{-5}$ mC de Ra$D + E$, puis avec une autre source de 6,3 mC, déposée sur plexiglas et encore mieux purifiée en Ra$D + E$. Mon but était surtout d'obtenir les rapports d'intensité entre les différents rayonnements électromagnétiques et de vérifier ainsi si le désaccord entre les résultats expérimentaux et les résultats théoriques de Levinger sur l'ionisation interne [16] pouvait provenir d'erreurs expérimentales.

Le rapport d'intensité $\frac{K}{\gamma}$ de 800 keV a été déterminé à l'aide d'un cristal de NaI (T1), ayant la forme d'un cylindre de 2,54 cm de hauteur et diamètre, placé devant un photomultiplicateur E. M. I. 5311 relié à un amplificateur de 2 Mc du Commissariat à l'Énergie atomique. Les impulsions étaient analysées par un sélecteur à une bande variable.

J'ai vérifié que dans les conditions expérimentales utilisées (source à quelques centimètres de cristal), le rendement total du cristal

$$R = \frac{\text{Nombre d'impulsions dans le spectre total (Compton + photoélectrique)}}{\text{Nombre de photons } \gamma \text{ incidents}}$$

variait suivant la formule simple

$$R = 1 - e^{-\frac{\mu}{\rho} m},$$

où m est la masse superficielle du cristal en grammes par centimètre carré et $\frac{\mu}{\rho}$ le coefficient d'absorption massique, en centimètres carrés par gramme, du rayonnement γ considéré. Cette vérification a été faite en comparant les rapports observés d'intensité $\frac{K}{\gamma}$ de 660 keV de ^{137}Cs et $\frac{K}{\gamma}$ de 393 keV de ^{113}Sn, corrigés de l'absorption des rayonnements K, et les rapports vrais

$$\frac{K}{\gamma} = \alpha_K W_K,$$

où α_K et W_K sont le coefficient de conversion interne et le rendement de fluorescence dans la couche K, tous deux bien connus. On a

$$\frac{R_\gamma}{R_K} = \frac{\alpha_K W_K}{\left(\frac{K}{\gamma}\right)_{\text{obs}}},$$

d'où l'on déduit R_γ puisque $R_K = 1$.

La figure 3 représente le spectre des raies K et γ de ^{210}Po. On obtient le rapport de leur intensité en calculant le rapport des aires correspondantes

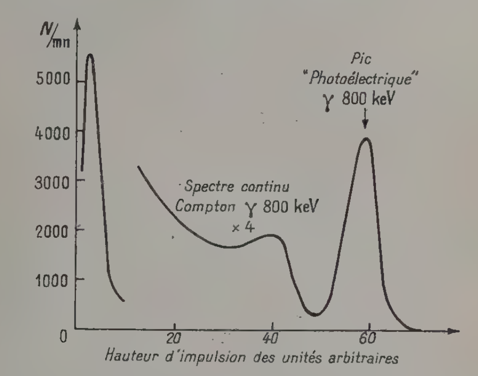


Fig. 3. — Spectre de la raie K de Pb et de la raie γ de 800 keV émises par ^{210}Po (compteur à NaI).

après avoir extrapolé à l'énergie zéro le spectre continu compton de la raie γ (celui de la raie K est négligeable). En tenant compte du rendement $R_\gamma = 0{,}46 \pm 0{,}05$ de la raie γ et de l'absorption des raies K et γ dans les écrans placés entre la source et le cristal, on obtient

$$\frac{K}{\gamma\,(800\ \text{keV})} = 0{,}25 \pm 0{,}05.$$

Le rapport d'intensité $\frac{K}{L}$ a été déterminé à l'aide d'un cristal cylindrique de NaI (T1) de 7,1 mm d'épaisseur : dans ces conditions le rendement du cristal pour les deux rayonnements est égal à 1, sans que la contribution du spectre Compton de la raie de 800 keV soit trop élevée dans la région étudiée.

Entre la source de 20 mC déposée sur nickel, et le cristal était disposé un écran de beryllium de 2,15 mm d'épaisseur ou un écran de plexiglas de 5 mm suivi d'un écran d'aluminium de 0,1 mm pour absorber les électrons et les raies K de Ni excités par les rayons α dans le support.

Ces écrans absorbent d'une façon importante le rayonnement L du plomb : les facteurs de transmission calculés sont de 32 pour 100 avec Be + Al et de 39 pour 100 avec plexiglas + Al. Mais la source étant très proche du cristal, le calcul est incertain. Nous avons préférer estimer ces facteurs en comparant avec une source de RaD les rapports d'inten-

sité observés dans les conditions ci-dessus, et le rapport $\frac{L(\mathrm{Bi})}{\gamma(47\ \mathrm{keV})}$ vrai, pris égal à 8 ± 2, d'après les déterminations de nombreux auteurs. En tenant compte de la légère différence entre les rayonnements L de Bi et ceux de Pb nous obtenons ainsi pour ceux-ci des facteurs de transmission de 22 pour 100 avec Be + Al et de 15 pour 100 avec plexiglas + Al. En adoptant ces valeurs, en tenant d'autres facteurs secondaires (transmission du rayonnement K, existence d'un pic de fuite accompagnant le pic photoélectrique vrai du rayonnement K) le rapport observé des aires des deux pics K et L conduit à un rapport d'intensité

$$\frac{L}{K} = 140 \pm 40.$$

Pour la détermination de ce rapport avec la deuxième source, de 6,3 mC déposée sur plexiglas, aucun rayonnement parasite n'intervient, si bien qu'il n'est pas nécessaire d'interposer entre la source et le cristal d'autre écran que celui d'aluminium de 0,04 mm qui recouvre le cristal. Il n'y a donc qu'à tenir du facteur de transmission de cet écran pour le rayonnement L que j'ai déterminé expérimentalement (0,77). J'obtiens ainsi la valeur

$$\frac{L}{K} = 110 \pm 30.$$

sans doute plus précise que la précédente.

***

Nous avons reporté dans les tableaux I et II les différents résultats expérimentaux sur les intensités relatives des rayonnements L, K et γ de 800 keV émis par ^{210}Po.

Tableau I.

Intensités absolues des rayonnements L et K de Pb *et du rayonnement* γ *de* 800 keV *en nombre de photons par* α.

Références.	L.	K.	800 keV.
[1]......	4.10^{-4}	–	–
[3] et [4]...	–	10^{-5}	$(1,0 \pm 0,4).10^{-5}$
[8]......	–	$(1,5 \pm 0,5).10^{-6}$	$(1,8 \pm 0,14).10^{-5}$
[9]......	$(2,6 \pm 0,5).10^{-4}$	$(1,6 \pm 0,5).10^{-6}$	$(1,6 \pm 0,2).10^{-5}$
[10]......	$(2,93 \pm 0,22).10^{-4}$	–	–
[11]......	–	$(2,00 \pm 0,38).10^{-6}$	–

On voit que malgré la très grande diversité des méthodes (compteurs Geiger-Müller, proportionnels et à scintillation, sources très différentes) l'ensemble des valeurs expérimentales sont en bon accord. Pour la suite de cet exposé nous retiendrons les valeurs moyennes suivantes des nombres de photons par

$$n_L = (2,7 \pm 0,3).10^{-4},$$
$$n_K = (1,8 \pm 0,4).10^{-6},$$
$$n_\gamma = (1,3 \pm 0,3).10^{-5}.$$

On peut calculer les nombres $n_{K_{ci}}$ et $n_{L_{ci}}$ de photons K et L excités par conversion interne : le rayonnement γ de 800 keV étant un rayonnement quadripolaire électrique, son coefficient de conversion interne est $\alpha_K = 9.10^{-3}$ (d'après les tables de Rose et al. [13] dont l'exactitude est bien établie dans cette région) d'où

$$n_{K_{ci}} = n_\gamma \alpha_K W_K = (1,1 \pm 0,4).10^{-7},$$

où $W_K = 0,95$ est le rendement de fluorescence dans la couche K. De même

$$n_{L_{ci}} \simeq n_\gamma \alpha_K W_L \left(1 + \frac{L}{K}\right) = (6,1 \pm 0,9).10^{-8},$$

en prenant

$$W_L = 0,40 \quad \text{et} \quad \frac{L}{K} = \frac{1}{3,7} \quad [5].$$

Tableau II.

Intensités relatives du rayonnement L au rayonnement K et du rayonnement K au rayonnement γ.

Références.	$\frac{L}{K}$.	$\frac{K}{\gamma}$.
[11].................	–	$0,134 \pm 0,025$
[12].................	–	$0,25 \pm 0,05$
Présent travail.......	110 ± 30 140 ± 40	$0,26 \pm 0,03$

La conversion interne du rayonnement γ de 800 keV n'explique donc qu'une très faible partie des rayonnements K et L observés. Il paraît impossible de faire appel à l'existence d'un autre rayonnement γ pour rendre compte des intensités observées puisqu'entre 15 et 4 000 keV aucun rayonnement n'a été observé, ni en photons ni en électrons de conversion. De plus si cette hypothétique rayonnement γ était émis en cascade avec celui de 800 keV (ce que suggère le schéma de niveaux de ^{206}Pb), on devrait observer des coïncidences $K - \gamma$ de 800 keV, et L-γ, ce qui n'est pas le cas. Par ailleurs tous les auteurs éliminent la possibilité de contamination des sources par RaD + E, ainsi que l'excitation par les rayons d'atomes de plomb ou autres, présents dans la source (*voir* en particulier [8], [9] et [10]). Il faut donc admettre que la majeure partie des rayonnements K et L observés sont dus à l'ionisation interne. Plus précisément les probabilités

d'ionisation des couches K et L sont égales à

$$p_K = \frac{n_K - n_{K_{\text{cl}}}}{W_K} = (1,8 \pm 0,4) . 10^{-6},$$

$$p_L = \frac{n_L - n_{L_{\text{cl}}}}{W_L} = (8,1 \pm 1,6) . 10^{-4},$$

en prenant

$$W_K = 0,95 \quad \text{et} \quad W_L = 0,34 \quad (^2).$$

Les résultats d'I. Curie et F. Joliot [1] ($1,5 . 10^{-3}$ photons M par α) conduisent de même à

$$p_M = \frac{n_M}{W_M} = 2,5 . 10^{-2},$$

en prenant $W_M = 0,06$ d'après la valeur de Lay dans l'uranium.

Les calculs théoriques de Migdal [14] conduisent aux probabilités suivantes :

$$p_K = 2,8 . 10^{-6}, \quad p_L = 1,1 . 10^{-4}, \quad p_M = 1,4 . 10^{-3}.$$

En reprenant ces calculs pour tenir compte du recul du noyau et autres effets, Levinger [15] obtient

$$p_K > 10^{-7} \quad \text{et} \quad 0,5 . 10^{-4} < p_L < 8 . 10^{-4}.$$

Comme nous venons de le voir, il paraît difficile d'expliquer les divergences entre résultats expérimentaux et théoriques par une erreur dans l'estimation des probabilités expérimentales d'ionisation interne. Par contre Levinger a montré que les différentes corrections sur les calculs théoriques peuvent supprimer la divergence.

Nous venons d'apprendre que Schaeffer, à Birmingham en réévaluant l'effet de recul du noyau a obtenu une valeur $p_K = 1,8 . 10^{-6}$ en excellent accord avec la valeur expérimentale.

4. Les électrons émis par ^{210}Po. — Outre l'émission de raies X et de raies électroniques Auger, l'ionisation interne doit se manifester par un spectre continu d'électrons de faible énergie. Grace et al. [8] ont observé un spectre d'électrons, non attribuables à ceux du Ra$D + E$ et du reste d'énergie supérieure couvrant une large bande s'étendant jusqu'à 1 MeV, avec une intensité de $(1,1 \pm 0,3) . 10^{-6}$ e/α.

Grace a repris ces expériences sur une source de 200 mC en distinguant les électrons des photons par l'emploi d'un champ magnétique. Il obtient ainsi pour le nombre des électrons énergiques $(2,6 \pm 1,2) . 10^{-7}$ e/α compatible avec le nombre d'électrons de conversion de la raie γ de 800 keV déduit des N_γ et α_K $(1,5 \pm 0,3) . 10^{-7}$ e/α.

Indépendamment j'ai étudié les électrons énergiques émis par ^{210}Po avec une source de 6,3 mC, purifiée à deux reprises en Ra$D + E$ par entraînement avec du plomb, recouverte de polystirène pour arrêter les rayons α. Les rayonnements étaient détectés par un compteur cylindrique en aluminium (paroi de 0,1 mm) qui a l'avantage d'avoir un rendement plus faible que les compteurs en bout pour les rayonnements électromagnétiques. Dans ces conditions, l'absorption du rayonnement dans le cuivre et le tantale permet de distinguer trois composantes : la première correspond au rayonnement L, la deuxième à un rayonnement électronique, la troisième au rayonnement γ de 800 keV (le rayonnement K est trop peu intense pour donner une composante visible). La deuxième composante s'absorbe à peu près exponentiellement avec un coefficient d'absorption de 10 à 12 cm²/g dans Ta et Cu : s'il s'agissait d'une composante électromagnétique, ces valeurs correspondraient à des énergies de 40 à 70 keV (Ta) et 30 keV (Cu) : comme le polonium n'émet aucun rayonnement ayant ces énergies la composante est donc électronique.

On peut déduire des courbes une valeur approximative des parcours des électrons : 0,27 g/cm² dans Ta et 0,23 à 0,25 g/cm² dans Cu, ce qui, d'après les tables correspond à une énergie d'environ 700 keV, voisine de l'énergie des électrons de conversion de la raie γ de 800 keV (710 keV pour les électrons K, 784 keV pour les électrons L).

Nous avons vérifié avec une source de Ra$D + E$ de 3,3 mC que le dispositif donnait des valeurs correctes pour le coefficient d'absorption et le parcours des électrons du spectre du RaE. D'autre part le rapport des nombres d'impulsions sans écran dus respectivement à la composante électronique de Po et au spectre β du RaE permet d'obtenir un ordre de grandeur du nombre d'électrons N_e émis par désintégration de Po :

$$N_e = (5 \pm 2) . 10^{-7}$$

nettement supérieur à la nouvelle valeur de Grace et al. $(2,6 \pm 1,2) . 10^{-7}$, mais compatible et sans doute moins précis, surtout à cause des géométries.

On peut donc admettre que, d'après leur énergie et leur intensité, ces électrons énergiques sont les électrons de conversion de la raie γ de 800 keV.

Il serait difficile de les attribuer à l'ionisation interne car d'après la théorie l'énergie moyenne des

(²) Le rendement de fluorescence global W_L a été calculé en adoptant les valeurs théoriques de Levinger [16] pour les probabilités partielles

$$p_{L_{\text{I}}} : p_{L_{\text{II}}} : p_{L_{\text{III}}} = 8,7 : 30 : 61$$

et les rendements de fluorescence partiels

$$W_{L_{\text{I}}} = 0,10, \quad W_{L_{\text{II}}} = 0,45,$$

$$W_{L_{\text{III}}} = 0,29 \quad \text{et} \quad W_{L_{\text{IV}}} = 0,29$$

(M. Riou, *J. Physique Rad.*, 1952, **12**, 593), l'erreur pouvant être de l'ordre de 10 pour 100.

électrons extraits d'une couche doit être de l'ordre de l'énergie de liaison de celle-ci, plus précisément, d'après les courbes de Levinger (*fig.* 4) le nombre d'électrons K d'énergie supérieure à 200 keV ne représente que quelques pour-cent du spectre de ces électrons, soit moins de 10^{-7} e/α. Le nombre d'électrons L serait sans doute encore inférieur.

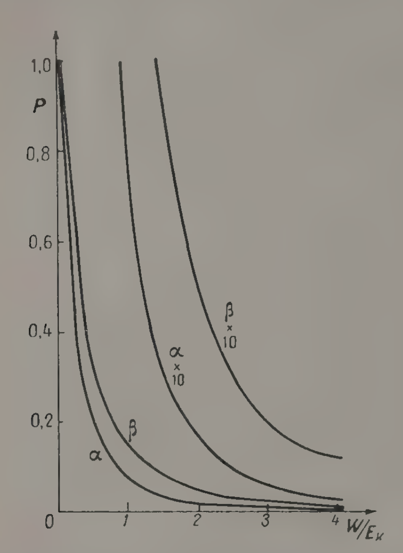


Fig. 4. — Spectre d'énergie des électrons K d'ionisation interne en émission α ou β (W énergie cinétique, E_K énergie de liaison de la couche K) (d'après Levinger [16]).

Récemment Radha Raman Roy et M. L. Goes [16] ont étudié à la chambre à diffusion le spectre d'électrons émis par ^{210}Po, ils observent $2{,}7.10^{-3}$ e/α dans la région 40-100 keV alors que d'après la théorie de Migdal le nombre devrait être de $6{,}4.10^{-4}$ e/α; par ailleurs, le spectre expérimental présente un maximum vers 60 keV alors que le spectre théorique décroît avec l'énergie. Les électrons Auger K ne peuvent expliquer ce maximum puisque leur intensité doit être de 10^{-7} e/α. Il est également difficile d'assimiler ces électrons aux électrons de conversion dans les couches L, M, ... d'une raie γ d'environ 75 keV car s'il en était ainsi leur intensité, de l'ordre de 2.10^{-3} e/α est trop grande par rapport à l'intensité observée du rayonnement L, $2{,}7.10^{-4}$ e/α.

Les difficultés d'observation des électrons d'ionisation interne (contaminations, effets secondaires) rendent donc encore difficile la comparaison sur ce point avec la théorie.

Intervention de M. Daudel. — Il y a bien entendu lieu de tenir compte maintenant dans cette discussion du fait que Levinger pense que sa méthode utilisant un développement semi-convergent sous-estime fortement la probabilité de l'ionisation interne des électrons K au cours de l'émission α.

Intervention de M. Grace. — Les précédentes mesures de la proportion d'électrons durs émis par ^{210}Po étaient basées sur l'absorption dans l'aluminium. Ces mesures ont depuis été répétées avec une source de 200 mC dans des conditions identiques : elles ont donné le même résultat. Malheureusement l'application d'un champ magnétique a montré que l'interprétation de ces mesures était fausse, une part du taux de comptage étant dû à la radiation L du plomb, qui a à peu près le même coefficient d'absorption dans l'aluminium. Le nouveau nombre de $(2{,}6 \pm 1{,}2).10^{-7}$ électrons par particule α (noté par M. Riou) est basé sur les mesures utilisant un champ magnétique : notre ancien nombre de $(1{,}1 \pm 0{,}3).10^{-6}$ s'explique comme nous l'avons dit, et doit être abandonné.

Note ajoutée à la correction des épreuves. — A. Lagasse et J. Doyen (*C. R. Acad. Sc.*, 1954, **239**, 670) viennent d'étudier par absorption dans l'aluminium le spectre des électrons d'ionisation interne, spectre en coïncidence avec les rayonnements K et L. Ce spectre est en accord avec celui calculé par Migdal.

BIBLIOGRAPHIE.

[1] Curie I. et Joliot F. — *J. Physique Rad.*, 1931, **2**, 20.
[2] Benedetti S. de et Kerner E. H. — *Phys. Rev.*, 1947, **71**, 22.
[3] Siegbahn K. et Slatis H. — *Arkiv. Mat. Astr. Fys.*, 1947, A **35**, 3.
[4] Zajac B., Broda E. et Feather N. — *Proc. Phys. Soc.*, 1948, **60**, 501.
[5] Alburger D. E. et Froedlander G. — *Phys. Rev.*, 1951, **81**, 523.
[6] Alburger D. E. et Pryce M. H. L. — *Phys. Rev.*, 1953, **92**, 514.
Pryce M. H. L. — *Rep. Birmingham Conf. Nucl. Phys.*, 1953, 14.
[7] Benedetti S. de et Minton G. H. — *Phys. Rev.*, 1952, **85**, 944.
[8] Grace M. A., Allew R. A., West D. et Halban H. — *Proc. Phys. Soc.*, 1951, **64**, 493.
[9] Riou M. — *J. Physique Rad.*, 1952, **13**, 244 et 487; *Ann. Physique*, 1953, **8**, 535.
[10] Rubinson W. et Bernstein W. — *Phys. Rev.*, 1951, **82**, 334 et 1952, **86**, 545.
[11] Barber W. C. et Helm R. H. — *Phys. Rev.*, 1952, **86**, 275.
[12] Pringle R. W., Taylor H. W. et Standii S. — *Phys. Rev.*, 1952, **87**, 384.
[13] Rose M. E., Goertzel G. H., Spinrad B. I., Harr J. et Strong P. — *Phys. Rev.*, 1951, **83**, 79.
[14] Migdal A. — *J. Physique théor. exp.*, U. R. S. S., 1941, **11**, 207.
[15] Levinger J. S. — Communication précédente et *Phys. Rev.*, 1953, **90**, 11.
[16] Radha Raman Roy et Goes M. L. — *C. R. Acad. Sc.*, 1953, **237**, 1515.

L'ANALYSE DU PHÉNOMÈNE DE PRODUCTION DES POSITRONS MONOÉNERGÉTIQUES

Par L. A. SLIV.

Summary. — Formulas for the coefficients of conversion with the formation of positrons with single energy have been obtained for different kinds of radiations and their analysis has been carried out. The question has been examined of the possibility of using the formation of positrons with single energy to determine the width of nuclear levels with energies of excitation of 1-6 MeV.

Introduction. — A part les processus connus de conversion interne, comme la conversion des photons sur les électrons orbitaux et la formation interne de paires, il peut exister un processus de conversion au cours duquel se forment des paires électron-positron avec une énergie strictement déterminée. En réalité, si au moment où le noyau se trouve dans l'état d'excitation, et si dans son cortège électronique il existe un (ou plusieurs) niveaux libres, il est possible qu'une paire électron-positron se forme dans laquelle l'électron possède l'énergie nécessaire pour occuper le niveau vacant et le positron le reste de l'énergie dégagée par le noyau.

L'énergie du positron (y compris l'énergie propre) qui s'éloigne sera égale à

$$E_p = \Delta W - mc^2 + P, \qquad (1)$$

où ΔW, l'énergie libérée par le noyau au cours de la transition donnée; P, le travail d'extraction de l'électron correspondant au niveau vacant. ΔW étant donnée, le positron qui s'éloigne peut avoir diverses énergies dépendant du niveau qui va être occupé par l'électron de la paire. Il en résultera un spectre discret de positrons, dont chaque raie correspondra au remplissage d'un niveau déterminé du cortège électronique. Nous allons désigner ces raies positroniques par les mêmes lettres que les niveaux qui vont être occupés (K, L, M).

Ce spectre discret de positrons se trouvera au-delà du spectre continu (normal d'électrons positifs) dans la direction des plus grandes énergies, et la raie K se placera plus loin que les autres. Nous allons nommer la paire électron-positron ainsi formée une paire du spectre de raies et le positron qui s'éloigne, le positron monoénergétique.

La probabilité de formation du positron monoénergétique dépend des trois quantités : *a*. de la probabilité de conversion avec formation d'une paire du spectre de raies; *b*. de la probabilité de formation d'une vacance dans un niveau du cortège électronique du noyau excité et *c*. de la probabilité d'occupation du niveau électronique par la paire du spectre de raies. La probabilité de formation du positron monoénergétique sera donc égale au produit de ces trois probabilités.

Probabilité de conversion avec formation d'une paire du spectre discret. — La probabilité de formation par unité de temps d'une paire dans laquelle l'électron aurait l'énergie d'un électron extranucléaire et le positron, l'énergie $E_p = \Delta W - E^{\mathfrak{J}}$ est donnée par la formule bien connue de la théorie des perturbations :

$$\mathcal{W}_D^{\mathfrak{J}} = \frac{2\pi}{\hbar} \sum_i \left| \int \psi_f^* \{ e A_0 + e(\boldsymbol{\alpha}.\mathbf{A}) \} \psi_i \, \mathrm{d}\tau \right|^2, \qquad (2)$$

où ψ_i est la fonction d'onde de l'électron dans l'état d'énergie négative $E = - E_p$; ψ_f, la fonction d'onde de l'électron sur le niveau discret $\mathfrak{J}$ ($\mathfrak{J} = K, L, M, \ldots$).

La sommation dans la formule (2) se fait sur les deux états initiaux possibles de l'électron à énergie négative.

A_0 et $\mathbf{A}$ sont les potentiels scalaire et vectoriel des champs qui provoquent la transition nucléaire donnée et $\mathbf{L}$ le vecteur-matrice de Dirac.

Nous allons envisager les transitions électriques dipolaires et quadripolaires, les transitions magnétiques dipolaires et celles que l'on nomme transitions non rayonnantes ($0 \to 0$). On peut s'attendre à ce que pratiquement seules ces transitions provoquent la formation des positrons monoénergétiques.

Si l'on substitue actuellement dans (2) les potentiels pour les transitions sus-mentionnées et les fonctions d'onde relativistes de l'électron, on peut effectuer l'intégration de cette expression. Pour obtenir le coefficient de conversion il faut diviser par le nombre de quanta émis par seconde. L'expression exacte pour $\alpha_D^{\mathfrak{J}}$ est donnée dans notre travail [1].

Ici nous ne donnerons que les courbes obtenues d'après les formules exactes et quelques formules approximatives.

Les trois questions suivantes vont nous intéresser : *a*. la dépendance du coefficient pour la formation

de paires du spectre discret α_D à l'énergie $K\left(=\frac{\Delta W}{mc^2}\right)$, rayonnée par le niveau $\mathfrak{J}$; *b.* l'influence de la charge du noyau Z; *c.* le rapport des probabilités de la formation d'une paire du spectre discret $\alpha_D^{\mathfrak{J}}$ et de celle d'une paire du spectre continu α_{II}.

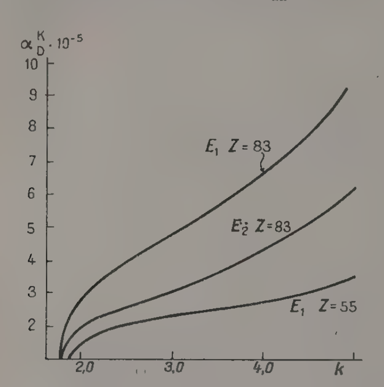


Fig. 1. — Dépendance du coefficient de conversion α_D^K à l'énergie rayonnée K.
E_1, rayonnement électrique dipolaire;
E_2, rayonnement électrique quadripolaire.

Dans le cas où $K \approx 2$ et $p \ll 1$ (p, quantité de mouvement du positron s'éloignant en unités mc), nous obtenons les formules approximatives suivantes :

$$\alpha_D \sim (\alpha Z)^3 \rho\, e^{-\frac{\pi\alpha Z}{\rho}} \left|\Gamma\left(1 + i\frac{\alpha Z}{p}\right)\right|^2 \quad \text{pour la transition } E_1, \tag{3}$$

$$\alpha_D \sim (\alpha Z)^3 \rho\, e^{-\frac{\pi\alpha Z}{\rho}} \left|\Gamma\left(2 + i\frac{\alpha Z}{p}\right)\right|^2 \quad \text{pour la transition } E_2. \tag{4}$$

Dans le cas où $K > 2$ et $p \geq 1$ la dépendance du coefficient de conversion α_D à l'énergie rayonnée K est représentée par la figure 1 pour $\mathbf{E}_1$ avec $Z = 55$ et 83 et pour E_2 avec $Z = 83$.

Les courbes permettent de conclure que dans le cas donné :

La dépendance α_D de la charge Z du noyau $K > 2$ est représentée par la figure 2 pour les transitions E_1 et M_1; la courbe pour le rayonnement E_2 coïncide avec la courbe M_1; pour cette raison elle n'est pas indiquée. La variation de α_D avec Z peut être donnée approximativement comme suit :

$$\alpha_D \sim a + Z^2 \quad \text{pour les transitions } E_1, \tag{5}$$

$$\alpha_D \sim a' + Z^5 \quad \text{»} \quad \text{»} \quad E_2 \text{ et } M_1. \tag{6}$$

Sous cette forme ces formules nous seront utiles pour déterminer, plus tard, la dépendance de la probabilité de formation du positron monoénergétique à Z.

Comparant les courbes obtenues (*fig.* 2) avec les courbes analogues pour la conversion ordinaire, on peut conclure que par rapport à l'énergie le cas

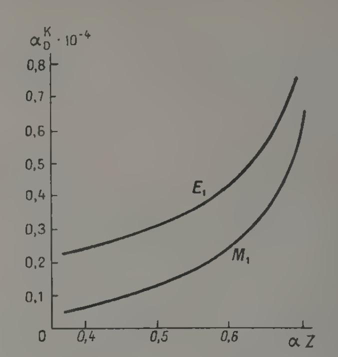


Fig. 2. — Dépendance du coefficient de conversion α_D^K à la charge nucléaire Z.
E_1, rayonnement électrique dipolaire;
M_1, rayonnement magnétique dipolaire.

examiné de la conversion ressemble à une conversion avec formation de paires; par rapport à Z, il ressemble plutôt à la conversion électronique.

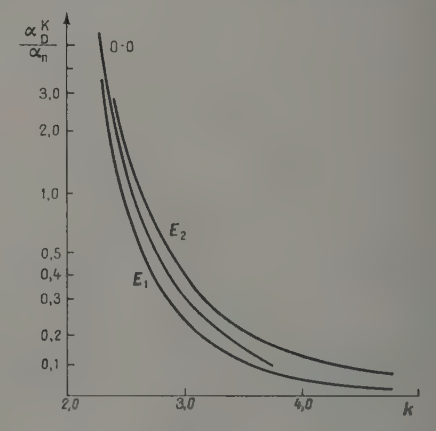


Fig. 3. — Rapport du coefficient de conversion avec formation des paires du spectre discret α_D^K au coefficient de conversion avec formation des paires du spectre continu en fonction de l'énergie rayonnée K.

Les positrons monoénergétiques peuvent être observés en même temps que les positrons résultant d'une conversion ordinaire. Pour cette raison il est intéressant de comparer la probabilité α_D de la formation d'une paire de spectre discret avec la probabilité totale de la formation d'une paire du spectre continu α_π.

La figure 3 montre la dépendance de $\frac{\alpha_D}{\alpha_\pi}$ de

l'énergie K pour trois genres de radiation avec $Z = 83$.

La figure 3 montre que le rapport $\frac{\alpha_D}{\alpha_\pi}$ dépend faiblement de l'ordre de polarité de la transition.

Probabilité d'ionisation de l'atome excité. — Nous allons nous intéresser seulement aux cas d'ionisation d'un atome, dont le noyau se trouve dans l'état d'excitation ou qui a subi l'excitation en même temps que l'ionisation. Dans ces cas seulement on peut créer des conditions nécessaires à la formation d'un positron monoénergétique.

Le moyen le plus simple d'ionisation accompagnant l'excitation serait la transition γ en cascade du niveau excité au niveau fondamental. Si pendant cette transition en cascade un des quanta est fortement converti et le quantum suivant possède une énergie suffisante pour la formation d'une paire du spectre de raie, nous aurons des positrons monoénergétiques.

Comme exemple nous allons envisager la transition nucléaire ThC''-Th D. Si le schéma proposé dans [2] est valable, la transition β conduirait à un des niveaux excités du noyau Th D qui se trouve au-dessus de 2 900 keV. Pendant la transition au niveau excité 2 620 keV l'énergie dégagée sera moindre que 600 keV; le coefficient de conversion serait donc plus grand que 0,1. Il existera, ainsi, pour la transition du niveau 2 620 keV, une probabilité appréciable par la formation des positrons monoénergétiques. On peut indiquer un groupe d'autres transitions en cascade chez les éléments radioactifs naturels pour lesquelles pourraient se former des positrons monoénergétiques. Au cours des réactions (n, γ) et (p, γ) se forment bien souvent des transitions en cascade donnant des conditions favorables pour la création des positrons monoénergétiques.

Un autre moyen d'ionisation et d'excitation du noyau a lieu pendant la capture d'un électron orbital par le noyau. La capture de l'électron K ou L peut avoir lieu sur un niveau excité du noyau. Dans ce cas pour la formation d'un positron monoénergétique il est nécessaire seulement que l'énergie de l'excitation soit suffisante. Ces conditions se réalisent pour la capture K par les noyaux pour ^{65}Zn, ^{194}Au, etc. Le processus de capture K est le plus approprié pour provoquer simultanément la perturbation du noyau et l'ionisation du cortège électronique.

D'autres moyens d'ioniser l'atome, dont le noyau est excité, sont moins efficaces que les cas examinés. La probabilité de l'ionisation de la couche K pendant une désintégration α ou β est plus faible, $\left(< \frac{1}{Z^2}\right)$. La probabilité de l'ionisation par une particule lourde heurtant le noyau est tout à fait petite.

La largeur du niveau atomique. — La largeur du niveau non occupé d'un atome est habituellement égale au total des deux largeurs; la largeur des radiations Γ_R et la largeur déterminée par l'effet Auger Γ_A. Les largeurs Γ_R et Γ_A sont calculées et mesurées avec précision pour plusieurs éléments dans la région $Z \geqq 54$.

La concordance entre la théorie et les données de l'expérience est bonne, ce qui justifie bien la théorie. Des calculs pour les atomes lourds se compliquent par la nécessité d'employer des fonctions relativistes pour les électrons; pour cette raison ils ont été effectués pour ^{47}Ag et ^{79}Au seulement. Il y a peu de données expérimentales sur les largeurs des niveaux des atomes lourds; celle du niveau K est connue pour un seul cas ^{74}W). Toutefois, même pour les atomes lourds on a constaté une concordance satisfaisante entre la théorie et l'expérience. En se basant sur les données obtenues on peut faire la conclusion suivante pour les largeurs Γ_R et Γ_A pour le niveau K; la largeur de radiation Γ_R est proportionnelle à Z^4 et Γ_A est approximativement constante jusqu'à $Z < 30$.

La largeur du niveau L $(L_{\rm I} + L_{\rm II} + L_{\rm III})$ est en général déterminée par l'effet Auger.

Les données concernant les largeurs des niveaux $\Gamma = \Gamma_R + \Gamma_A$ nous sont nécessaires pour déterminer la probabilité relative de l'occupation d'un niveau atomique libre par l'électron d'une paire créée.

Probabilité globale d'émission d'un positron monoénergétique. — La probabilité de l'émission d'un positron monoénergétique $\mathcal{W}_M^\mathcal{J}$ est égale au produit des trois probabilités : probabilité de formation d'une paire du spectre discret $\mathcal{W}_D^\mathcal{J}$, probabilité $\mathcal{W}_i$ pour qu'au moment donné dans l'enveloppe de l'atome le niveau soit vacant, et la probabilité pour que le niveau en question soit occupé par l'électron d'une paire créée. Cette dernière probabilité étant égale au rapport des largeurs des niveaux nucléaires Γ_γ et atomique Γ, on obtient

$$\mathcal{W}_M^\mathcal{J} = \mathcal{W}_D^\mathcal{J} \mathcal{W}_i \frac{\Gamma_\gamma}{\Gamma}. \tag{7}$$

Avec l'augmentation de l'énergie rayonnée K, la probabilité de formation du positron monoénergétique $\mathcal{W}_m$ croît, puisque $\mathcal{W}_D$ et particulièrement Γ_γ croissent avec l'énergie. L'influence de la charge du noyau Z sur $\mathcal{W}_m$ se détermine en première approximation par les facteurs W_D et W_i (l'influence de Z sur Γ_γ reste encore indéterminée). Comme il a été démontré plus haut, $\mathcal{W}_D^K \sim a + Z^2$ dans le cas de la radiation électrique dipolaire D; dans le cas de la radiation électrique quadripolaire et de la radiation magnétique dipolaire $\mathcal{W}_D^K \sim a' + Z^3$. Étant donné la largeur du

niveau K, $\Gamma \sim a'' + Z^{3,5}$, les meilleures conditions pour la formation des positrons monoénergétiques seraient réalisées quand la valeur de Z se trouve dans la région intermédiaire. Pour le rayonnement électrique quadripolaire et le rayonnement magnétique dipolaire, la probabilité de la formation des positrons monoénergétiques doit croître assez lentement avec Z.

En ce qui concerne la probabilité de formation des positrons L monoénergétiques, il est à noter que tandis que W_D^L est plus petit (3-6 fois) que W_D^K, la durée de la vie du niveau L, $\sim \Gamma_L^{-1}$ est au contraire plus longue que celle du niveau K, $\sim \Gamma_K^{-1}$. Pour cette raison la probabilité de formation des positrons L peut être comparée avec la probabilité de formation du positron K monoénergétique.

Le phénomène de formation des positrons monoénergétiques est intéressant, en premier lieu, comme méthode pour mesurer la largeur des niveaux nucléaires correspondants aux énergies d'excitation de 1-6 MeV. Pour les excitations plus faibles que 1 MeV ou plus fortes que 6 MeV il existe d'autres moyens de mesurer la largeur des niveaux et ces mesures ont été effectués. Pour les énergies d'excitation 1-6 MeV on possède des données sur les largeurs, obtenues en mesurant les rapports de nombres de particules α de long parcours au nombre de quanta. Toutefois à présent on a des raisons sérieuses de douter de l'exactitude des résultats obtenus par cette méthode. Ce fait augmente l'importance de vérifier ces données sur les largeurs par une méthode nouvelle.

Il est également intéressant de déterminer l'ordre de grandeur de l'effet considéré et trouver les meilleures conditions pour l'observer. La plus grande largeur qu'ont les niveaux nucléaires correspondant aux transitions E_1. Quand l'énergie d'excitation se trouve dans les limites 1-3 MeV la largeur la plus probable du niveau serait, dans ce cas, $\Gamma_\gamma \approx 1$ eV. Vu que la largeur du niveau K atomique dans le domaine des valeurs moyennes de Z est égale à quelques volts, le rapport $\frac{\Gamma_\gamma}{\Gamma} \leq 1$. Supposant que la probabilité de l'ionisation du niveau K est égale à $\mathfrak{W}_D \approx 1$, nous aurons, en prenant la formule (7), pour le coefficient de conversion avec formation des positrons monoénergétiques : $\alpha_M \leq 10^{-5}$. Les transitions en cascade, dans lesquelles une des radiations γ consécutives serait E_1, ne se trouvent pas très souvent. On peut prévoir, par exemple, des cascades semblables dans le spectre des rayons γ qui se forment après que le neutron thermique soit absorbé par le noyau. En observant les positrons monoénergétiques on pourrait déterminer avec plus de précision la largeur d'un niveau correspondant à une transition dipolaire.

Ordinairement, le spectre γ formé après la capture K ou après la désintégration β contient des transitions M_1 et E_2 ou leur mélange. Les largeurs correspondantes aux transitions M_1 et E_2 ont été mesurées expérimentalement seulement pour des énergies d'excitation faibles (jusqu'à 1 MeV). Si l'on porte les données expérimentales sur la courbe (*fig.* 4) on trouve une dispersion des valeurs Γ_γ

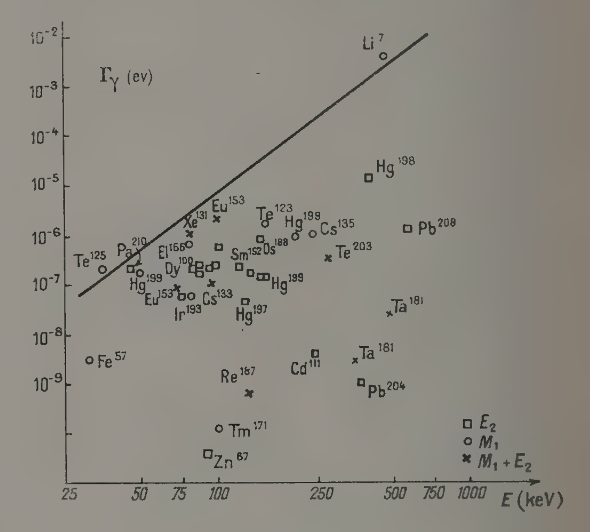


Fig. 4. — La largeur des niveaux des transitions M_1 et E_2.

dans les limites d'une bande large de $\sim 10^3$. Le sens physique de cette dispersion devint apparent après que l'on eut prouvé l'existence des « niveaux de rotation » nucléaires dus à une déformation partielle sur la surface du noyau [3]. La largeur de ces niveaux de rotation peut être 100 fois plus grande que celle obtenue selon la formule pour la transition d'une seule particule nucléaire. En revanche, les niveaux associés à l'excitation d'un nucléon (à cause de changement de la déformation au cours d'une transition) auront une largeur plus petite que celle calculée selon la formule. Ainsi une des différences essentielles entre les niveaux de rotation et les niveaux d'un nucléon serait la largeur Γ_γ. Pour trouver les largeurs des niveaux, dont l'énergie $\sim h\nu \geq 1$ MeV, la méthode d'observation des positrons monoénergétiques sera utile. Comme exemple, indiquons le spectre γ de ^{65}Cu, formé après la capture K par le noyau. Il y a de fortes raisons pour croire que le niveau 1120 MeV serait un niveau de rotation. D'autre part, dans ce cas on se trouve en présence des conditions, nécessaires pour la formation des positrons monoénergétiques. On peut évaluer le coefficient de conversion auquel on doit s'attendre. Prolongeant la droite de la figure 4 dans le sens de l'énergie $h\nu > 1$ MeV, nous obtenons pour les largeurs des transitions E_2 et M_1 : $\Gamma_\gamma \approx 0{,}1$ eV.

La largeur du niveau K atomique est $\Gamma_K \approx 2$ eV. Prenant W_D sur la courbe de la figure 2 et en le portant

dans (7) nous obtenons $\alpha_M \approx 2.10^{-7}$. En concluant, indiquons encore un moyen possible pour obtenir les largeurs d'un niveau. Après la capture K, un électron K reste dans l'enveloppe atomique. Si la conversion qui s'ensuit a lieu sur la couche K non remplie, l'énergie de l'électron s'échappant serait moindre que dans le cas d'une conversion sur une couche K occupée. Il en résulterait deux raies de conversion, déplacées l'une par rapport à l'autre. Le rapport de leurs intensités sera égal à $\frac{\Gamma_\gamma}{\Gamma}$.

Intervention de M. Daudel. — Avec M. Jean (*C. R. Acad. Sc.*, 1949, 228, 662), nous avons discuté un phénomène très analogue à celui dont M. Sliv vient de parler. Le phénomène de Sliv est au fond la réalisation simultanée d'une création *e* et d'une émission β_+. Le nôtre est la réalisation simultanée d'une capture *e* et d'une émission β_+. Dans les deux cas on doit observer une émission monoénergétique de positons. La découverte du phénomène que nous avons étudié serait intéressante car elle montrerait la nécessité d'une théorie symétrique du neutrino analogue à celle de Majorana.

Intervention de M. Deutsch. — Je voudrais signaler un résultat obtenu par M. Mc Carthy au M. I. T. sur la désintégration β double. Il trouve une émission de deux particules β avec *énergie totale unique* de 4 MeV et une vie moyenne d'à peu près 10^{17} ans dans le cas du ^{48}Ca. Cela signifie que le processus a lieu sans émission de neutrino. Cependant la vie moyenne semble un peu longue pour une théorie de Majorana et il est possible qu'il s'agit d'un phénomène nouveau dont on ne tient pas compte dans la théorie de désintégration β ordinaire.

Intervention de M. Teillac. — La période pour le réarrangement du cortège n'est-elle pas toujours très courte devant la période d'émission de photons ?

Réponse de M. Sliv. — C'est justement le rapport des largeurs nucléaire et atomique $\frac{\Gamma_\gamma}{\Gamma}$ qui tient compte du réarrangement de l'atome.

Intervention de M. Deutsch. — Ne doit-il pas y avoir un domaine d'énergie où seules des *raies* de positron pourraient être émises, sans aucun spectre continu ?

Réponse de M. Sliv. — Il est exact que pour des énergies de transition γ légèrement < 1 MeV on n'observerait que les raies monoénergétiques de positrons.

BIBLIOGRAPHIE.

[1] Sliv L. A. — *J. Exp. théor. Phys.*, U. R. S. S., 1953, **25**, 7.
[2] Surugue. — *J. Physique Rad.*, 1946, **7**, 5 et 145.
[3] Bohr A. et Mottelson. — *Det. Kgl. Danske Videnskab Selskab Mat.-Fys. Medd.*, 1953, **27**, n° 17.

SUR LES PAIRES DE LA TRANSITION MONOPOLAIRE DE ^{16}O

Par S. GORODETZKY, R. ARMBRUSTER et P. CHEVALLIER.

Summary. — The angular correlation of the monopole transition electron pairs from the first excited level o+ of the Oxygen 16 is studied experimentaly. The luminosity of the apparatus employed allows — by an absorption method — the study of this angular correlation in different energy regions of the electrons.

Le noyau de ^{16}O a dans son niveau fondamental le spin o, parité +. Le premier niveau se trouve à 6,05 MeV et a même spin et même parité, soit + o, que le niveau fondamental. On se trouve ainsi en présence de l'une des très rares transitions o + o + de la Physique nucléaire, soit une transition monopolaire. La théorie de la corrélation angulaire des électrons de paires de cette transition a été faite par Oppenheimer (1941). Cette transition a fait l'objet d'un très beau travail de Devons (1949). L'étude théorique de la transition monopolaire en tenant compte du programme de renormalisation de l'électrodynamique quantique a été faite par Dalitz (1951). Enfin Devons a repris expérimentalement cette question dans son travail très important (1954).

Dans un travail préliminaire relatif aux paires de conversion interne de différentes transitions γ, nous avons construit un appareil pour l'étude de la corrélation d'électrons des paires. Ces mesures étant expérimentalement assez délicates, il faut prendre dans la construction des appareils des précautions assez grandes pour ne pas mesurer d'effets parasites, étant donné la faible intensité des effets principaux mesurés. Aussi avons-nous vérifié l'appareil destiné à l'étude des paires de conversion interne. Nous avons fait quelques expériences préliminaires pour vérifier en quelque sorte le bon fonctionnement de l'appareil. Tout d'abord des mesures rapides de la corrélation bien connue γ-γ du ^{60}Co montrent que l'appareil ne présente pas de vices rédhibitoires. Ensuite nous nous sommes attaqués à la mesure plus difficile de la corrélation angulaire des paires de transition monopolaire de ^{16}O. La comparaison de ce que l'on obtient avec les résultats très détaillés et très précis obtenus par Devons permet de savoir si l'on se trouve expérimentalement sur un terrain solide. Nous avons constaté qu'il en était bien ainsi et de plus que l'appareil était très lumineux. Ceci nous a encouragé à essayer d'étudier expérimentalement les variations de la fonction de corrélation en fonction de l'énergie. La théorie, tant celle d'Oppenheimer que de Dalitz, donne en effet la distribution angulaire en fonction de l'énergie. Jusqu'ici expérimentalement les résultats en fonction de l'angle étaient obtenus en intégrant expérimentalement sur l'énergie. Nous avons pu par des méthodes d'absorption étudier l'effet de la variation de l'énergie sur la fonction de corrélation. L'effet est très net et dans la limite des erreurs expérimentales se trouve en parfait accord avec la théorie. Le travail est actuellement en cours pour obtenir le même effet avec une précision accrue.

ÉTUDE DE L'ÉNERGIE DE RÉORGANISATION DU CORTÈGE ÉLECTRONIQUE DANS LES PHÉNOMÈNES DE RADIOACTIVITÉ β ET α

Par Mme P. BENOIST-GUEUTAL,
Laboratoire Curie de l'Institut du Radium.

Summary. — Corrections appearing in the theoretical study of β and α radioactivity when one considers the presence of the electrons of the emitting atom : 1. in the equations of conservation of energy; 2. in the calculation of the emission probability of an electron or an α particle.

1. **Introduction.** — On nous a parlé, dans plusieurs conférences, des effets, sur les électrons de l'atome émetteur, de l'émission par un noyau d'une particule chargée. L'intervention du cortège électronique en radioactivité β ou α peut également être envisagée sous un autre point de vue, lié bien entendu au précédent, et qui est celui de la correction apportée à la probabilité d'émission d'un électron ou d'une particule α lorsque l'on compare les résultats obtenus dans le cas d'un noyau nu et d'un noyau entouré de ses électrons périphériques. Ce problème, à cause de la complexité des calculs qu'il implique, n'a pas encore reçu une réponse quantitative définitive en particulier en ce qui concerne la forme des spectres β aux basses énergies. Toutefois, certains aspects qualitatifs peuvent en être précisés. Bien que je n'ai pas à ce colloque de résultats essentiellement nouveaux à apporter il m'a semblé intéressant d'exposer brièvement l'état actuel de la question. En effet il a pendant longtemps régné une certaine confusion sur ces problèmes et actuellement encore le même point de vue ne semble pas adopté par tous. Je me limiterai ici à rappeler quelques résultats qui pour la plupart ont déjà été publiés par moi-même ou d'autres auteurs.

2. **Conservation de l'énergie.** — Pour analyser en émission β les phénomènes liés à la présence du cortège électronique on doit considérer l'ensemble du système formé par le noyau, les électrons atomiques et le champ électron-neutrino [1]. On décrit l'opérateur hamiltonien du système en tenant compte des interactions coulombiennes entre particules chargées. L'opérateur H_β provoque à la fois, pour une émission β^- par exemple, le changement d'un neutron en proton dans le noyau et pour le cortège électronique une transition depuis un état stationnaire dans le champ coulombien du noyau de charge Z vers un état stationnaire dans le champ coulombien du noyau de charge $Z+1$. On doit écrire l'équation de conservation de l'énergie pour le système total

$$W_0 + \varepsilon_0 = \varepsilon_f + E_R + E, \qquad (1)$$

où W_0 est l'énergie cédée par le noyau, correspondant à la masse du noyau initial moins la masse du noyau final; E_R, l'énergie de recul du noyau résiduel; E, l'énergie totale des particules émises; ε_0 et ε_f, les énergies des électrons atomiques dans le champ des noyaux initial et final respectivement.

En émission α, si l'on veut, dans le cadre des théories existantes, tenir compte de la présence du cortège électronique [2], on doit étudier un état propre d'énergie $\mathcal{E}$ du système total formé par les électrons atomiques et la particule α en interaction. Dans le système du centre de gravité, l'hamiltonien de ce système est très peu différent de

$$\mathcal{H}(\mathbf{x}_\alpha \mathbf{x}_i) = H_\alpha(\mathbf{x}_\alpha) + H_e(\mathbf{x}_i) - \sum_i \frac{2e^2}{r_{i\alpha}}, \qquad (2)$$

où $H_\alpha(\mathbf{x}_\alpha)$ décrit la particule α de masse réduite, et $H_e(\mathbf{x}_i)$ les électrons du cortège dans le champ du noyau final de charge $(Z-2)\,e$.

$\mathcal{E}$ se décompose en $W_0 + \varepsilon_0$ quand la particule α est dans le noyau, en $\varepsilon_f + E_R + E$ quand la particule α est loin de l'atome et l'on obtient l'équation (1) de conservation de l'énergie.

Nous ferons l'hypothèse que l'état initial de l'atome est l'état fondamental de l'atome neutre de numéro atomique Z auquel correspond l'énergie de liaison $E_B(Z)$. Nous poserons

$$\varepsilon_0 = -E_B(Z). \qquad (3)$$

Nous savons comment les phénomènes de radioactivité β et α peuvent perturber l'état du cortège électronique en provoquant l'excitation ou l'ionisation d'un ou plusieurs électrons périphériques. A chaque état final du cortège correspond une énergie ε_f et par suite une énergie E différente. Toutefois la probabilité d'ionisation est très petite pour les électrons les plus liés et il s'ensuit que l'énergie moyenne d'excitation de l'atome final est faible. Cette énergie a été estimée, (1)-(3), à environ $23\,Z^{\frac{2}{5}}$ eV pour les atomes moyens et lourds; elle augmente lentement avec Z et reste inférieure à 140 eV pour $Z < 90$. On ne commettra donc pas une erreur importante en supposant que l'énergie libérée dans le processus correspond à un état final de l'atome où les électrons sont restés dans leur état

initial, c'est-à-dire dans l'état fondamental. Nous poserons donc

$$\varepsilon_f = -E_B(Z'), \tag{4}$$

où Z' est la charge du noyau final. Il faudrait en toute rigueur, étant donné la signification donnée à $E_B(Z)$, écrire, pour une émission β^- par exemple, où l'atome final est une fois ionisé

$$\varepsilon_f = -E_B(Z+1) + I_{Z+1},$$

d'où I_{Z+1} représente le premier potentiel d'ionisation de l'atome neutre de numéro atomique $Z + 1$. Toutefois I_{Z+1} est toujours inférieur à 15 eV et nous négligerons cette correction ainsi que la correction analogue en émission β^+ ou α.

Posons

$$\Delta E(Z) = E_B(Z+1) - E(Z). \tag{5}$$

$\Delta E(Z)$ est une quantité positive appelée quelquefois énergie de réorganisation adiabatique du cortège électronique, car elle est libérée, sous l'effet du changement de charge du noyau de Z à $Z + 1$, dans une transition où les états occupés du cortège sont les mêmes dans l'état initial et dans l'état final.

L'équation (1) de conservation de l'énergie s'écrit alors

$$\left.\begin{array}{ll} W_0 + \Delta E(Z) = E_R + W + q & \text{en émission } \beta^-, \\ W_0 - \Delta E(Z-1) = E_R + W + q & \text{en émission } \beta^+; \\ W_0 - \Delta E(Z-2) - \Delta E(Z-1) = E_R + E_\alpha + m_\alpha c^2 & \\ \qquad \text{en émission } \alpha; & \end{array}\right\} \tag{6}$$

où W et q représentent les énergies totales de l'électron et du neutrino émis (loin de l'atome émetteur) et E_α l'énergie cinétique observée de la particule α émise de masse $m_\alpha c^2$. La quantité $\Delta E(Z)$ peut être évaluée en utilisant une méthode due à Foldy [4] et des résultats de Dickinson [5].

On obtient [1]

$$\Delta E(Z) = 13{,}6\left[(Z+1)^{\frac{12}{5}} - Z^{\frac{12}{5}}\right] \text{eV} \tag{7}$$

pour les atomes moyens lourds. Une meilleure valeur est obtenue pour les atomes légers ($Z < \sim 20$) par la formule

$$\Delta E(Z) = 15{,}73\left[(Z+1)^{\frac{7}{3}} - Z^{\frac{7}{3}}\right] \text{eV}. \tag{7'}$$

$\Delta E(Z)$ augmente rapidement avec Z et atteint 18 keV pour $Z = 90$.

En émission β, cette quantité ΔE peut n'être pas négligeable devant l'énergie W_0 cédée par le noyau et représente toujours pour les noyaux moyens et lourds une correction plus importante que la correction d'énergie de recul du noyau surtout si W_0 est faible. En émission α, la correction d'énergie apportée par la présence du cortège électronique, de l'ordre de 30 à 40 keV pour $Z > 82$, est en général légèrement inférieure à $\frac{E_R}{2}$.

Les relations (6) montrent que la considération du cortège électronique modifie les conditions énergétiques de réalisation des phénomènes, par l'introduction du terme ΔE.

En émission β^-, il faut

$$W_0 \geqq \mu_0 c^2 + m_0 c^2 - \Delta E(Z)$$

($\mu_0 c^2$ et $m_0 c^2$ étant les masses au repos de l'électron et du neutrino); en émission β^+,

$$W_0 \geqq \mu_0 c^2 + m_0 c^2 + \Delta E(Z-1);$$

en émission α,

$$W_0 \geqq m_\alpha c^2 + \Delta E(Z-2) + \Delta E(Z-1).$$

La présence des électrons périphériques conduit à des conditions énergétiques plus restrictives pour l'émission de particules chargées positivement, moins restrictives en émission β^-. Il est ainsi possible de concevoir des noyaux émetteurs β^- en présence de leur cortège électronique, qui seraient stables vis-à-vis de l'émission β^- s'ils étaient dépouillés d'électrons périphériques.

3. **Influence du cortège électronique sur la probabilité d'émission des particules chargées.** — Comment est modifiée la probabilité d'émission d'une particule chargée par un noyau nu lorsque l'on tient compte de la présence des électrons atomiques ? On ne sait pas résoudre rigoureusement ce problème et différentes approximations doivent être utilisées selon les cas.

Considérons d'abord le cas de *l'émission* α : on peut montrer [2] qu'il est possible d'obtenir une fonction propre approchée de $\mathcal{H}(\mathbf{x}_\alpha \mathbf{x}_i)$ en remplaçant le terme d'interaction entre la particule α et les électrons par la valeur qu'il prend lorsque l'on suppose la particule α enfermée dans le noyau. A la précision des approximations faites, cette quantité est égale à

$$-\Delta_\alpha E = -\Delta E(Z-1) - \Delta E(Z-2).$$

On trouve alors que la probabilité d'émission d'une particule α d'énergie E_α est donnée par la formule usuelle $\lambda(E')$ où

$$E' = E_\alpha + E_R + \Delta E(Z-1) + \Delta E(Z-2) = W_0 - m_\alpha c^2.$$

La probabilité d'émission α en présence du cortège électronique est donc égale à la probabilité d'émission α par le noyau nu qui cède l'énergie W_0 et tout se passe comme si la particule α cédait ensuite, en traversant l'atome, la quantité $\Delta_\alpha E$ nécessaire à la dilatation du cortège électronique due au passage de Z à $Z - 2$.

Ce résultat peut être illustré par une image classique : en effet la longueur d'onde associée aux particules α émises par les noyaux est suffisamment petite devant les dimensions atomiques pour que l'on puisse la considérer comme un point chargé. On peut alors admettre que la particule α apparaît à la surface du noyau avec l'énergie que lui donne le noyau, le cortège n'étant pas modifié dans cette première étape du processus puisque la charge n'a

pas changé au voisinage de $r = 0$. Dans une deuxième étape la particule α en traversant l'atome lui cède l'énergie $\Delta_\alpha E$.

La nécessité d'introduire une correction dans les formules de l'émission α pour tenir compte de la présence des électrons atomiques a été montrée la première fois par Ambrosino et Piatier [6], mais la correction qu'ils proposaient introduisait deux fois le même effet [2].

Si l'on appliquait à *l'émission* β le raisonnement classique précédent, on trouverait que les spectres β sont simplement des spectres de Fermi de l'émission par un noyau nu qui cède l'énergie W_0, décalés vers les basses énergies de la quantité $\Delta E(Z - 1)$ pour les spectres β^+, vers les hautes énergies de $\Delta E(Z)$ pour les spectres β^-. Il n'y aurait ainsi, dans les spectres β^-, pas d'électrons d'énergie inférieure à $\Delta E(Z)$. Toutefois ce raisonnement classique n'est plus valable dans le cas des électrons peu énergiques car la longueur d'onde qui leur est associée est trop grande pour que l'on puisse les considérer comme ponctuels. Au contraire, si l'on étudie l'émission β en présence du cortège électronique, dans le formalisme rappelé au début du paragraphe 2, qui consiste à considérer l'hamiltonien complet de l'atome, on voit qu'il peut exister, parmi les états finaux, un état qui correspond à Z électrons dans l'état fondamental de l'atome $Z \pm 1$, plus un électron négatif ou positif d'énergie cinétique nulle. Il découle de ce formalisme que les spectres β^- doivent s'étendre entre m_0c^2 et $W_0 + \Delta E(Z)$, les spectres β^+ entre m_0c^2 et $W_0 - \Delta E(Z - 1)$ et que l'électron et le neutrino se partagent l'énergie E cédée (ou absorbée) par le cortège. Ce résultat est en contradiction avec l'image classique précédente et en accord avec celui proposé par Schwartz [7].

Il existe d'ailleurs certains résultats expérimentaux qui semblent confirmer ce point de vue. Freedman et al. [8] ont observé pour le ^{241}Pu un spectre β^- d'énergie maxima 20,5 keV. On a, dans ce cas, $\Delta E = 19$ keV.

De plus la forme observée du spectre entre 20,5 et 14 keV est très semblable à une forme de Fermi d'énergie maxima 20,5 keV, ce qui ne pourrait pas être compatible avec un spectre de Fermi d'énergie maxima (20,5 — 19) keV décalé, même en tenant en compte des conditions expérimentales d'élargissement. De même dans le RaD un spectre β^- de basse énergie a pu être mis en évidence par différents auteurs [9], [10], [11]. Les résultats les plus récents sont ceux de Huster [11] qui donnent $23{,}0 \pm 2{,}5$ keV pour l'énergie maxima, des électrons ayant été observés dont l'énergie est inférieure à $\Delta E = 16$ keV. Ces résultats semblent donc confirmer notre point de vue.

Certains auteurs d'autre part, avaient supposé sans justification théorique que l'énergie ΔE se dissipait en émission β^- sous forme de photons raisonnant ainsi par analogie avec le processus de désexcitation d'un atome. Nous voyons cependant que cette hypothèse n'est pas nécessaire puisque la conservation de l'énergie peut se faire sans intervention du champ électromagnétique à cause des interactions coulombiennes existant entre les électrons périphériques et, d'une part le noyau, d'autre part le β. De plus l'émission de photons par le cortège, simultanément à l'émission β^-, serait un processus du second ordre, donc moins probable.

En ce qui concerne la forme des spectres β on peut montrer que pour des électrons rapides il est possible d'utiliser l'approximation brusque qui consiste à négliger l'interaction du β avec les électrons du cortège. On trouve alors que la probabilité d'émission d'un électron d'énergie W est égale à la probabilité d'émission d'un électron d'énergie W par un noyau nu qui cède l'énergie $W_0 + \Delta E$. Cette approximation est valable pour des électrons dont l'énergie W est supérieure à environ $10\,\Delta E(Z)$. Pour des énergies plus faibles on peut tenir compte approximativement de l'interaction du β avec les électrons en la remplaçant par une fonction des coordonnées du β seul, qui représente le champ moyen créé par les électrons orbitaux. Les calculs les plus exacts d'effet d'écran sont ceux de Reitz [12]. Les corrections d'effet d'écran diminuent quand l'énergie du β augmente; elles sont négligeables pour des énergies supérieures à $\sim 10\,\Delta(Z)$, ce qui justifie nos prévisions concernant la limite au-delà de laquelle on peut négliger l'interaction du β et des électrons liés. Les résultats de Reitz ne sont pas donnés pour des énergies inférieures à $\Delta E(Z)$. Au-dessous de cette limite on ne peut actuellement qu'essayer de donner des indications qualitatives sur la modification de la forme des spectres β aux basses énergies. L'effet d'écran des électrons atomiques tend à diminuer le nombre d'électrons lents en émission β^-, à l'augmenter en émission β^+. Les phénomènes d'ionisation interne et de rayonnement de freinage interne font perdre de l'énergie au β et tendent à augmenter le nombre d'électrons lents.

En émission β^+ tout concourt donc pour augmenter le nombre d'électrons lents. En émission β^-, les électrons atomiques éjectés par ce phénomène d'ionisation interne viennent se superposer à la partie molle du spectre. Toutefois l'effet d'écran pourrait éventuellement compenser l'augmentation du nombre d'électrons lents due aux autres phénomènes ce qui pourrait expliquer que dans le cas du ^{241}Pu et du RaD la forme observée du spectre au voisinage de $\Delta E(Z)$ soit en bon accord avec celle de Fermi.

Intervention de Mlle M. Perey. — Deux radioéléments naturels : MTh_1 et Ac, présentent la partilarité de se désintégrer par processus β sans que l'on ait pu mettre en évidence ces rayons. Seule la loi de

déplacement de valence permet d'affirmer l'existence de ces désintégrations :

$$\mathrm{Th} \xrightarrow{\alpha} \mathrm{MTh}_1 \xrightarrow{\boxed{\beta}} \mathrm{MTh}_2 \xrightarrow{\beta}$$

$$\mathrm{Pa} \xrightarrow{\alpha} \mathrm{Ac} \xrightarrow{\boxed{\beta}} \mathrm{RA}C \xrightarrow{\beta}$$

Dans le premier cas le descendant est émetteur β, tandis que dans le second le descendant est émetteur α :

L'étude des désintégrations de l'Ac et du MTh_1 a été faite au Laboratoire Curie il y a déjà quelques années, soit seule, soit en collaboration avec M. Lecoin ou avec celui-ci et Tsien, Teillac et Riou.

Nous n'examinerons ici que le cas de la désintégration de l'Ac.

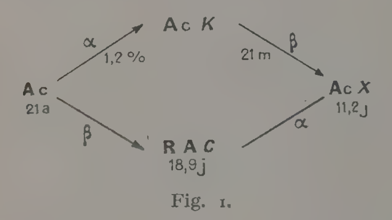


Fig. 1.

Nous avons montré que 1,2 pour 100 des atomes d'Ac se désintégraient par processus α pour donner Ac *K* premier isotope du francium.

La transformation principale se fait par émission β pour donner RAc (isotope Th). Cet embranchement de 1,2 pour 100 permet de calculer le nombre de désintégrations β devant se produire, en fonction des rayons α observés. Cette émission simultanée permet également le contrôle des activités des sources utilisées.

Si nous faisons le bilan énergétique de la réaction nous obtenons 6,4 MeV ± 0,4 pour la branche supérieure.

L'énergie des α du RAc plus E recul + $E\gamma$ RAc étant 6,2 ± 0,2 MeV, nous pouvons conclure en première approximation que l'énergie mise en jeu dans la transition β de l'Ac est faible, mais devant l'imprécision des différentes déterminations des énergies des rayonnements dans les deux branches, nous ne pouvons avoir aucune valeur précise.

Nous nous sommes attachés, Lecoin et moi, à étudier cette transition β Ac → RAc après avoir déterminé les énergies des rayons β et γ émis par Ac*K*.

Étant donné la courte période d'Ac*K*, $T = 21$ mn formé directement dans Ac cette connaissance est indispensable et il y aura toujours superposition des deux phénomènes.

Préparation des sources. — Toutes les expériences ont nécessité une purification extrêmement poussée de l'Ac (pureté de 10^{-5} à 10^{-6} en RAc et Ac*K*) à t_0. Il nous était possible de travailler 1 h sans que les descendants (à l'exception d'Ac*K*) ne soient reformés en quantité gênante.

Étant donné que les rayonnements recherchés sont des α, des β et des γ de très faible énergie, les sources doivent être constituées par le minimum de matière, or l'Ac dont nous disposons se trouve avec des terres rares. D'autre part un grand nombre d'opérations chimiques doivent être effectuées en présence d'entraîneurs. Ceci nécessite donc de purifier *d'abord* le lanthane actinifère, puis par une nouvelle méthode de fractionnement, d'éliminer la plus grande partie de matière inerte.

Nous avons pu ainsi obtenir des sources de 0,5 mC d'Ac exempt de tout dérivé dans moins de 0,1 mg de La_2O_3. Nous avons utilisé des quantités de 2.10^{-2} mg de La_2O_3/cm^2 sur des feuilles d'Al de 0,5 mg/cm².

Résultats. — La détermination de l'énergie des rayons β a été faite au moyen de chambres de Wilson à basse pression.

La détermination des quantum γ a été faite au moyen de compteurs Geiger-Müller par absorption dans des écrans ou par absorption sélective.

Je me bornerai à indiquer les résultats expérimentaux.

Les résultats que nous avons trouvés pour Ac*K* viennent d'être entièrement confirmés par Hyde à Berkeley.

Actinium K.

β limite supérieure, 1,2 MeV ± 0,1, spectre complexe.

	Rayons X et γ.	Nombre de quanta par désintégration.
Raie L, γ	14,8 keV	0,25 ± 0,07
	48,6 »	0,27 ± 0,05
	300 »	0,06 ± 0,03

Actinium.

β bande d'électrons mous, 7 à 30 keV avec une raie très nette et intense de 12 keV constituée par la moitié des rayons observés. Cette bande correspond à 0,1 pour 1 désintégration.

	Rayons X et γ.	Nombre de quanta.
Raie L, γ	15 keV	(5 ± 1).10^{-2}
	36,8 keV ± 0,07	(2,2 ± 0,4).10^{-3}

Le schéma de désintégration que nous avons donné est le suivant :

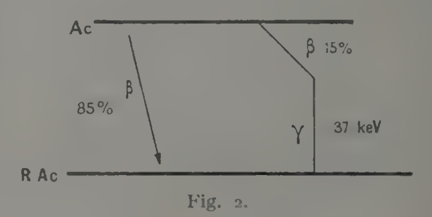


Fig. 2.

Intervention de M. Lecoin. — Je m'excuse de cette discussion d'expériences déjà anciennes, mais

dans la mesure où leur interprétation a conduit à imaginer des modes d'interaction nouveaux entre le cortège électronique et le noyau, nous avons pensé qu'elles pourraient trouver place dans ce Congrès.

Les résultats exposés par Mlle Perey constituent une sorte de puzzle. L'interprétation la plus simple nous a semblé conduire au schéma indiqué ci-dessus. Ce schéma postule que le rayonnement γ de 37 keV observé est lié à la transition Ac $\rightarrow$ RAc. Cette affirmation permet en effet de rendre compte, d'une part des photons de 15 keV, qui dans la limite de précision de nos expériences semblent bien correspondre à des photons α du RAc (expériences d'absorption sélective de Riou). D'autre part, elle permet d'interpréter la bande d'électrons observés entre 7 et 15 keV comme étant des photoélectrons de conversion dans le niveau L, et la bande d'électrons compris entre 20 et 30 keV comme résultant de la conversion dans le niveau M. Il en résulte que le spectre β émis par l'actinium devrait être un spectre complexe, 15 pour 100 des désintégrations donnant lieu à l'état excité de 37 keV du radioactinium, la limite supérieure du spectre ayant une valeur inconnue. Dans ces conditions, 85 pour 100 des désintégrations devraient se faire directement sur l'état fondamental du radioactinium, et la limite supérieure du spectre β devrait avoir une énergie de 37 keV. Il est difficile d'avoir une idée précise sur ce que peut être la répartition spectrale du rayonnement β pour une telle limite supérieure d'énergie. Les calculs de Mme Benoist dans le cas d'une transition permise montrent que 70 pour 100 des rayons β devraient être émis avec une énergie supérieure à 7 keV.

Nous ne connaissons pas la nature de la transition Ac $\rightarrow$ RAc; mais même s'il s'agit d'une transition défendue, l'ordre de grandeur du nombre d'électrons émis avec une énergie supérieure à 7 keV ne semble pas être très différent.

Puisque nous avons vu à la chambre de Wilson les photoélectrons α de 15 keV, il est impossible de penser que nous n'ayons pu observer l'existence d'un tel spectre β.

Il faut néanmoins signaler que les conditions expérimentales ne nous permettaient pas d'étudier une éventuelle émission de photons de basse énergie (énergie inférieure à 7 keV). Or, si l'on place devant une chambre de Wilson à pression normale 2 mC d'actinium privé de ses dérivés, on observe dans la chambre, en même temps que des photoélectrons L, un grand nombre de paquets d'ions qui semblent correspondre à des photoélectrons de très basse énergie ($\sim$ 3 keV). L'hypothèse de l'émission d'un important rayonnement de photons de basse énergie paraît donc probable.

Le schéma de désintégration de l'actinium indiqué ci-dessus paraît donc encore incomplet, et d'autres expériences semblent nécessaires avant de conclure au sujet de l'absence d'un rayonnement β dans la transition directe de Ac $\rightarrow$ RAc.

Intervention de M. Curran. — Le phénomène intéressant de réarrangement a été très difficile à déceler par les expériences tentées pour démontrer son existence. Ne pourriez-vous donner quelques indications complémentaires sur la façon de le mettre en évidence ?

Intervention de M. Radvanyi. — Il me semble que l'on a aussi observé expérimentalement un manque d'électrons très peu énergiques par rapport à la forme théorique des spectres β pour des radioéléments de Z faible. En particulier M. Curran au compteur proportionnel a observé — je crois — un tel défaut de β^- pour des énergies inférieures à 1 keV dans le cas du tritium et l'effet du cortège électronique sur le spectre β^- du tritium devrait pourtant être négligeable.

Réponse de M. Curran. — La forme du spectre de ^{3}H pour une énergie inférieure à 1 keV semble indiquer un déficit bien net d'électrons lents. La plupart des défauts de la méthode expérimentale semblent accroître l'intensité dans cette région. Une étude théorique précise de ^{3}H par la méthode de Mme Benoist pourrait être très utilement comparée aux résultats expérimentaux.

Intervention de M. Deutsch. — Si j'ai bien compris la Communication de Mme Benoist, il semble que la région d'incertitude théorique correspond plutôt à l'énergie moyenne d'excitation atomique qu'à la différence ΔE de liaison du cortège. N'est-ce pas l'énergie d'excitation moyenne qui correspond à la différence entre le cas où l'électron traverse l'atome sans que les positions et les vitesses des électrons du cortège changent du tout et le cas où ils subissent un réarrangement adiabatique aux fonctions d'onde correspondant au cortège final ?

BIBLIOGRAPHIE.

[1] Benoist-Gueutal P. — *Thèse*, Paris, 1952.
[2] Benoist-Gueutal P. — *C. R. Acad. Sc.*, 1953, **236**, 691.
[3] Serber R. et Snyder H. S. — *Phys. Rev.*, 1952, **87**, 152.
[4] Foldy L. L. — *Phys. Rev.*, 1952, **86**, 195.
[5] Dickinson W. C. — *Phys. Rev.*, 1950, **80**, 563.
[6] Ambrosino G. et Platier H. — *C. R. Acad. Sc.*, 1951, **232**, 400.
[7] Schwartz H. M. — *Phys. Rev.*, 1952, **86**, 195.
[8] Freedman M. S., Wagner Jr. F. et Engelkemeir D. W. — *Phys. Rev.*, 1952, **88**, 1155.
[9] Insch G. M., Balfour J. G. et Corran S. C. — *Phys. Rev.*, 1952, **84**, 805.
[10] Jaffe A. A. et Cohen S. G. — *Phys. Rev.*, 1953, **89**, 454.
[11] Huster E. — *Phys. Rev.*, 1953, **92**, 1076.
[12] Reitz J. R. — *Phys. Rev.*, 1950, **77**, 10.

SUR LES CORRÉLATIONS ANGULAIRES DES ÉLECTRONS DE CONVERSION, AVEC UNE ÉTUDE PARTICULIÈRE DE LA CASCADE DU ^{111}Cd

Par ERNST HEER,
École Polytechnique Fédérale, Zurich.

Summary. — The gamma-gamma angular correlation is an important tool in modern nuclear spectroscopy. It gives us the possibility of determining angular momenta of nuclear levels and multipole orders of gamma transitions. In principle, the same information can be obtained if the conversion electrons are measured in stead of the γ rays. This procedure is especially well suited for reasons of intensity in cases of high conversion coefficients.

The principal difficulty which then occurs is the problem of the source. This source must be sufficiently thin to avoid scattering of the electrons and at the same time must show no influence of external fields on the angular correlation.

Experiments with the cascade of ^{111}Cd are described, where sources consisting of a thin liquid metallic film were used successfully.

Introduction. — Les mesures de corrélation angulaire reposent sur le fait que la répartition angulaire de deux rayonnements nucléaires successifs est, en général, anisotrope. Les rayonnements dont il s'agit sont les particules α et β, les rayons γ et les électrons de conversion. Nous nous intéresserons par la suite avant tout aux transitions γ et aux électrons de conversion.

Dans une expérience de corrélation angulaire (que nous désignerons par la suite C. A.), on mesure le nombre de coïncidences en fonction de l'angle θ, avec lequel, à partir de la source, on voit les deux détecteurs.

La fonction de corrélation est alors développée en fonctions sphériques sous la forme

$$W(\theta)=\sum_k a_k P_k(\cos\theta). \qquad (1)$$

La comparaison des coefficiencts a_k avec la théorie, qui est aujourd'hui développée dans tous les cas d'importance pratique, nous permet d'atteindre certaines propriétés des trois niveaux et des deux rayonnements intéressés.

Prenons, en particulier, les transitions γ : les coefficients a_k sont fonctions des trois spins I_A, I_B, I_C et des deux ordres multipolaires L_1 et L_2. En général, il ne sera pas possible, à l'aide d'une mesure C. A., qui le plus souvent ne donne qu'un ou deux coefficients a_k, de déterminer ces cinq grandeurs. Cependant, en liaison avec d'autres mesures (spectroscopie β, etc.), on pourra souvent établir un schéma de désintégration sans ambiguïté.

La C. A. a acquis une importance particulière, parce qu'elle permet de déterminer avec une précision extraordinaire les mélanges d'ordres multipolaires (par exemple quadrupôle électrique $E\,2$ et dipôle magnétique $M\,1$).

La figure 1 montre, par exemple, la variation des coefficients a_2 et a_4 avec la proportion du premier rayon γ dans la cascade du ^{111}Cd. A titre de comparaison, on a porté sur la figure le coefficient de

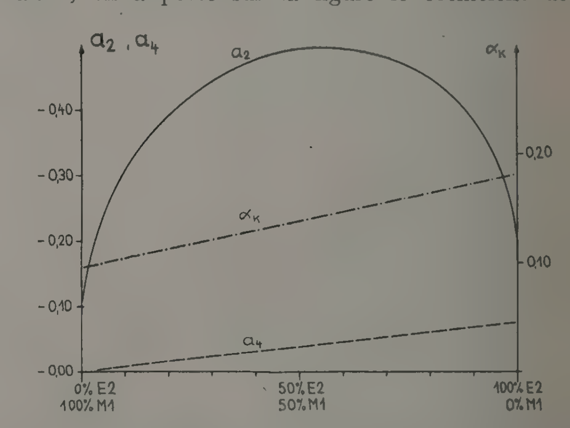


Fig. 1. — Comparaison des déterminations de mélanges pour différents ordres multipolaires d'une part à l'aide des corrélations angulaires, d'autre part, à l'aide de la conversion, en prenant pour exemple la première transition de la cascade de ^{111}Cd. Le coefficient a_2 est très sensible à un faible pourcentage de $E\,2$ ajouté à $M\,1$, contrairement au coefficient de conversion α.

conversion K qui est bien moins sensible à un faible mélange. Dans les circonstances favorables, les déterminations de corrélations angulaires permettent la mesure du moment dipolaire magnétique et du moment quadrupolaire électrique de l'état intermédiaire de la cascade [3], [4].

La détermination de ces grandeurs est réalisée, en pratique, surtout par la mesure de la corrélation (γ-γ). Lorsque l'une des deux transitions est convertie, le nombre de coïncidences vraies s'abaisse

d'un facteur $(1-\varkappa)$; le rapport des coïncidences vraies aux coïncidences dues au hasard est alors d'autant plus faible. Pour des coefficients de conversion $\varkappa$ importants, il est naturel de mesurer les électrons de conversion au lieu des rayons γ; on parle alors de corrélation $(\gamma - e^-)$, $(e^- - \gamma)$ ou $(e^- - e^-)$.

Dans le paragraphe suivant, nous rappellerons brièvement les résultats de la théorie des corrélations des électrons de conversion. Nous résumerons quelques expériences avant d'étudier plus en détail le cas de ^{111}Cd. Les expériences $(\gamma - \gamma)$ effectuées sur cette cascade ont montré que la corrélation est influencée fortement par les champs électriques du cristal [5]. Le but de notre recherche fut donc de développer une méthode qui permette de mesurer la corrélation des électrons de conversion en évitant les perturbations.

Résultats de la théorie. — La théorie de la corrélation des électrons a été développée depuis 1949 par Fierz [8] et surtout par Gardener [10]. Cependant, ces travaux contiennent des restrictions importantes. De plus, aucun résultat numérique n'est donné.

Rose, Biedenharn et Arfken [15] ont entrepris une résolution complète et relativiste du problème. Leurs résultats (*voir* aussi Biedenharn et Rose [6]) peuvent être résumés de la façon suivante :

Si l'on désigne par

$$W_{(\gamma - X)} = \sum_k a_k P_k(\cos\theta) \qquad (2)$$

la fonction de corrélation entre un quantum γ et une autre particule quelconque X, il s'ensuit pour la corrélation correspondante entre un électron de conversion et la particule X

$$W_{(e^- - X)} = \sum_k a_k b_k P_k(\cos\theta). \qquad (3)$$

La corrélation des électrons de conversion est ainsi « semblable » à la corrélation de la transition γ correspondante. De plus, des facteurs b_k qui interviennent peuvent être plus grands ou considérablement plus petits que 1 et dépendent des grandeurs suivantes :

1° Energie E de la transition convertie;

2° Nombre atomique du noyau Z;

3° Ordre multipolaire L du rayonnement converti;

4° Changement de parité (c'est-à-dire caractère électrique ou magnétique du rayonnement converti).

Toutefois la formule (3) n'est valable que dans le cas où le rayonnement converti ne contient qu'un ordre multipolaire. S'il y a des mélanges, le formalisme se complique un peu [6], mais les termes d'interférence doivent permettre, en général, une détermination très précise des rapports d'intensité.

Le calcul de la corrélation $(e^- - e^-)$ est évident; l'application successive des formules (2) et (3) donne :

$$W_{(e^- - e^-)} = \sum_k a_k b_k(1) b_k(2) P_k(\cos\theta).$$

Les coefficients b_k n'ont été calculés que pour la conversion K. Il est probable que les tables numériques des corrélations des électrons de conversion L seront prochainement publiées en même temps que le calcul des coefficients de conversion L.

Le problème de la diffusion. — Le problème de la diffusion dans la source est particulier à la corrélation des électrons de conversion. Il est mis en évidence par le fait que les transitions intéressantes avec un coefficient de conversion élevé comportent le plus souvent une faible énergie. On peut calculer, d'après Bothe [7], l'angle de déviation le plus probable que subit un électron dans la traversée de la matière. Pour une feuille d'or de 100 μg/cm² et avec une énergie de 100 keV pour l'électron, l'angle de déviation le plus probable est de 15°; on doit, par conséquent, s'attendre à ce que la fonction de corrélation soit fortement masquée.

Walter, Huber et Zünti [18] ont donné les premiers un procédé simple permettant la correction de diffusion. Toutefois ce procédé ne donne que l'ordre de grandeur de la correction et ne peut être employé, en particulier, pour les corrélations qui contiennent des termes à fonction sphérique d'ordre élevé. Frankel [9] a traité le problème mathématiquement et de façon rigoureuse. Il part de la fonction de distribution pour une diffusion unique et, à l'aide d'un théorème de la théorie des fonctions sphériques, calcule la fonction de distribution après de multiples diffusions. Frankel montre que l'on obtient la fonction de corrélation modifiée par la diffusion à partir de la véritable fonction, en multipliant chaque terme de fonction sphérique par un certain facteur. Des formules explicites et des représentations graphiques permettent le calcul de ce facteur dans chaque cas pratique. On suppose cependant que l'on peut négliger la diffusion de recul. Pour certains types de sources, comportant des feuilles relativement épaisses, la diffusion vers l'arrière peut n'être pas négligeable. Le calcul des corrections pour la diffusion de recul serait donc très souhaitable.

Bien que la méthode de Frankel permette la correction de diffusion, il est absolument nécessaire d'employer des sources minces; on peut admettre, en principe, que la déviation angulaire la plus probable ne doit pas dépasser 10°. Un nomogramme de Walter, Huber et Zünti permet de lire l'épaisseur permise en fonction de l'énergie et de la source mises en jeu. Le calcul de la correction de diffusion est souvent gêné par le fait que la répartition de l'activité sur la surface n'est pas homogène. Ce danger est surtout important dans des préparations

obtenues par évaporation d'une goutte de solution aqueuse. D'après Langer [12], l'épaisseur maximum d'une telle source peut être jusqu'à 1000 fois plus grande que l'épaisseur moyenne. Les préparations obtenues par électrolyse ou évaporation dans le vide poussé sont meilleures à ce point de vue.

A côté de la diffusion dans la source, la diffusion entre la source et le détecteur doit être réduite à un minimum. Il est donc utile de procéder aux mesures dans le vide ou, au moins, dans un gaz de faible section de diffusion.

Résultats expérimentaux. — Sur une cascade non perturbée à notre connaissance, on a mesuré jusqu'à aujourd'hui 11 corrélations d'électrons de conversion en cascade.

Dans un premier groupe, ^{197}Hg [18] ^{181}Ta [19] ^{230}Th [16] ^{170}Tm [17], il s'agit de corrélations entre un électron L et une autre particule. Comme indiqué plus haut, les coefficients b_k pour la conversion L ne sont pas encore calculés. Une comparaison des résultats avec la théorie n'est donc pas possible actuellement.

Dans un deuxième groupe, ^{153}Sm, ^{199}Au et ThB [17], l'une des transitions est une désintégration β permise. D'après la théorie, une telle corrélation est toujours isotrope et ne peut donc fournir aucune indication sur la transition convertie.

Trois autres mesures de corrélation, comparables avec la théorie, ont été réalisées pour des cascades ($e_k^- - \gamma$).

Pour ^{207}Pb [e_k^-(1,055 MeV) — γ (0,555 MeV)], les mesures (γ—γ) et (e_k^-—γ) donnent le même résultat : il s'agit d'une cascade

$$\frac{13}{2} \xrightarrow{M_4} \frac{5}{2} \xrightarrow{E_2} \frac{1}{2}$$

et les deux transitions sont pures [13].

Les résultats obtenus pour ^{121}Te

$$[e_k^-(82 \text{ keV}) - \gamma(214 \text{ keV})]$$

et pour ^{123}Te

$$[e_k^-(89 \text{ keV}) - \gamma(159 \text{ keV})]$$

sont en bon accord avec l'hypothèse

$$\frac{11}{2} \xrightarrow{M_4} \frac{3}{2} \xrightarrow[E_2]{M_1} \frac{1}{2}.$$

La deuxième transition est principalement formée par M_1; le mélange de E_2 est de 5 pour 100 pour ^{121}Te et de 1 pour 100 pour ^{123}Te [11]. Les mesures effectuées avec ces deux isotopes du tellure sont intéressantes parce qu'elles sont les seules parmi les 11 expériences de corrélation, qui fournissent autre chose que des données déjà connues depuis longtemps, et conduisent à des résultats vraiment nouveaux. Dans les deux cas, la mesure (γ—γ) est exclue à cause de l'importance de la conversion de la première transition.

Les expériences sur la cascade du ^{111}Cd. — Cette cascade a été étudiée en détail à Zurich pendant l'année dernière. C'est pourquoi je voudrais en parler plus longuement.

^{111}In se désintègre par capture K pour donner un état excité du ^{111}Cd. Celui-ci, par émission successive de deux rayons γ de 172 et 247 keV revient à l'état fondamental du ^{111}Cd. Les coefficients de conversion sont respectivement 5,4 et 10 pour 100. Il est donc heureusement possible de mesurer pour une cascade les quatre corrélations possibles (γ—γ), (γ—e_k^-), (e_k^-—γ) et (e_k^-—e_k^-) et de les comparer à la théorie.

La corrélation (γ—γ) du ^{111}Cd a été étudiée en détail par différents groupes de chercheurs. Je voudrais récapituler brièvement les résultats obtenus, renvoyant pour le complément aux publications parues sur ce sujet.

1. La C. A. correcte est en accord avec l'ordre des spins

$$\frac{7}{2} \rightarrow \frac{5}{2} \rightarrow \frac{1}{2}$$

si l'on admet que le premier rayon γ est un mélange de (1,3 ± 0,3) pour 100 de $E\,2$ et de (98,7 ± 0,3) pour 100 de $M\,1$, tandis que la deuxième transition est un quadrupole pur.

2. La corrélation angulaire est fortement influencée par un champ magnétique de l'ordre de 1000 gauss. A partir de la variation du coefficient a_2 en fonction du champ magnétique, on peut calculer le moment magnétique du premier état excité, qui a une vie moyenne de $1{,}23 . 10^{-7}$ s; on obtient

$$\mu = -(0{,}725 \pm 0{,}05)\mu_k.$$

3. La corrélation angulaire est fortement influencée par les champs électriques cristallins, qui interréagissent avec le moment quadrupolaire du noyau. C'est pourquoi les sources solides cristallines ne permettent pratiquement pas de mesurer la corrélation angulaire non perturbée.

D'autre part, on peut, la perturbation apportée par le champ électrique étant connue, par exemple dans un monocristal, calculer le couplage quadrupolaire. Une évaluation grossière du gradient de champs dans le monocristal d'indium métallique utilisé donne pour le moment quadrupolaire du premier état excité $\sim 10^{-24}$ cm² [4], [5].

4. En général, on obtient la corrélation angulaire non perturbée avec des sources fluides, par exemple des solutions aqueuses. Les métaux fondus sont particulèrement bien adaptés. On peut l'expliquer de la façon suivante, d'après Abragam et Pound [2]. Le champ électrique au voisinage du noyau interréagit fortement avec le moment quadrupolaire de celui-ci, mais, par suite de la rotation brownienne, la direction du champ à la place du noyau change tellement que le noyau ne peut suivre le mouvement.

La valeur moyenne du champ ést donc nulle et l'on mesure la corrélation correcte.

Les sources qui servent à la mesure de la corrélation des électrons de conversion doivent être très minces pour éviter la diffusion déjà mentionnée. Avec des sources minces cristallines, on doit éviter les perturbations très fortes. Les recherches effectuées avec les cristaux cubiques montrent que, dans des couches très minces le champ n'a pas la symétrie cubique et, par conséquent, conduit à une interaction quadrupolaire et à une perturbation de la corrélation. Il semble que le seul moyen de mesurer une corrélation non perturbée consiste à employer des sources liquides. Dans ce cas, l'exigence de couches minces est, par contre, difficile à réaliser. Il n'est pas question d'employer des solutions aqueuses entre deux films, car le liquide s'évapore dans le vide de l'appareil de mesure. Nous avons donc fait des essais avec des liquides ayant une pression de vapeur assez faible comme la glycérine, l'acide sulfurique concentré, l'acide pélargonique ($C_8H_{17}COOH$) et autres. Cependant, ces sources ne donnèrent pas la corrélation maximum, non perturbée. Cela vient de ce que ces liquides sont trop peu mobiles. La rotation brownienne est si lente que le champ électrique n'est pas éliminé.

La solution du problème fut finalement trouvée dans une source en métal liquide. Comme métal nous avons choisi le gallium, qui fond à 35° C et se conserve sous forme liquide pendant une longue durée à la température ambiante. La source est préparée de la façon suivante : ^{111}In est recueilli pratiquement dénué de charge par électrolyse sur une électrode de charbon, puis condensé par évaporation dans un vide poussé et rassemblé avec le gallium stable sur une feuille mince (le plus souvent du mica). L'épaisseur de la couche de gallium est d'environ 200 μg/cm². La diffusion dans cette mince couche est faible; on tient compte d'une petite correction, calculée d'après Frankel [9]. L'épaisseur de la feuille de mica varie de ~ 1 à $\sim 0,4$ mg/cm². Suivant son épaisseur, on doit compter sur une plus ou moins grande diffusion vers l'arrière. Les résultats obtenus avec de telles sources sont résumés dans la figure 2. Pour chaque préparation on a représenté les coefficients a_2 du développement

$$W(\theta) = \sum_k a_k P_k(\cos\theta)$$

pour les corrélations (γ—γ) et (γ—e_k^-). Les valeurs prévues par la théorie sont

$$a_2(\gamma-\gamma) = -0,158 \quad \text{et} \quad a_2(\gamma - e_k^-) = -0,286.$$

Toutes les sources donnent la corrélation (γ—γ) maximum, non perturbée, et montrent ainsi que le gallium est réellement fluide. D'autre part, seules les sources les plus minces donnent la valeur maximum théorique

$$a_2(\gamma - e_k^-) = -0,286.$$

On voit ainsi que la diffusion de recul dans le mica n'est pas négligeable et déjà pour 1 mg/cm² la fonction de corrélation est fortement masquée.

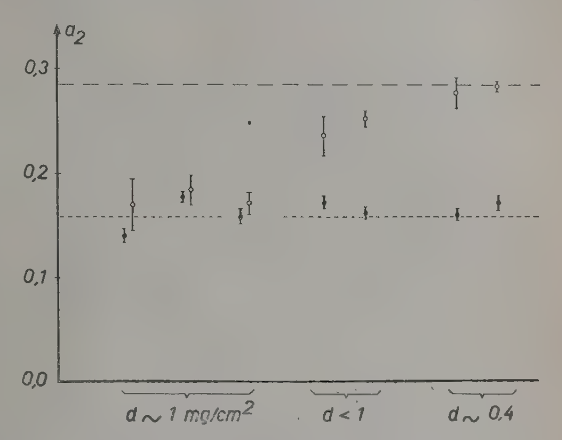


Fig. 2. — Coefficients a_2 pour les corrélations (γ—γ et (γ—e_k^-) dans des sources de gallium liquide. L'épaisseur du gallium est de 200 μg/cm² environ. On donne l'épaisseur de la feuille de mica qui sert de support. La diffusion de recul n'est négligeable et la valeur théorique du coefficient $a_2(\gamma$—$e_k^-)$ n'est atteinte que pour les feuilles les plus minces.

Nous avons ainsi atteint l'un des buts de nos recherches en arrivant à obtenir une source assez mince pour que la diffusion ne joue aucun rôle et telle que la perturbation due aux champs électriques environnants soit éliminée. On peut supposer que cette méthode est applicable pour de nombreuses recherches. Par exemple, il y a plusieurs corrélations (α—γ) qui ont été mesurées dans des sources cristallines et qui n'ont pas donné les corrélations angulaires prévues par la théorie [1]. L'emploi d'une source de métal liquide pourrait peut-être donner la corrélation non perturbée.

Pour quelques préparations nous avons aussi mesuré les corrélations (e_k^-—γ) et (e_k^-—e_k^-). La théorie prévoit pour celle-ci

$$a_2(e_k^- - \gamma) = -0,007 \quad \text{et} \quad a_2(e_k^- - e_k^-) = -0,012,$$

par conséquent des corrélations presque isotropes. Nos mesures, dans la limite d'erreur statistique de 0,01 environ sont en accord avec ces valeurs.

Dans de nombreux cas, la corrélation des électrons de conversion est intéressante parce que la mesure de la corrélation donne les coefficients b_k et, par conséquent, permet la détermination de l'ordre multipolaire et du changement de parité du rayonnement. Rose [14] a montré que l'on peut obtenir ce même résultat, en principe, lorsque la corrélation angulaire est modifiée par un champ extérieur. En effet, si l'on mesure pour la même source les

corrélations (γ—γ) et (γ—e_k^-), on obtient les deux répartitions

$$W_{(\gamma-\gamma)} = \sum_k a_k G_k P_k(\cos\theta),$$

et

$$W_{(\gamma-e_k^-)} = \sum_k a_k G_k b_k P_k(\cos\theta).$$

De ces deux relations, on peut déduire les coefficients b_k et déterminer les données voulues. Ce procédé repose sur l'hypothèse que les facteurs d'atténuation sont les mêmes pour ces deux corrélations. Nous avons montré ceci en prenant quelques sources atténuées et en y mesurant les deux corrélations.

Ces remarques ne sont toutefois pas valables pour les corrélations (e_k^-—γ) et (γ—γ). Si la première transition est convertie, le cortège électronique est perturbé dans le temps où le noyau se trouve au niveau intermédiaire. L'interaction du cortège électronique avec le noyau n'est donc pas le même que dans la corrélation (γ—γ). La mesure du facteur d'atténuation dans la corrélation (e_k^-—γ) peut alors nous donner la durée d'excitation du cortège électronique et la grandeur du champ intermédiaire qui cause cette excitation au voisinage du noyau. Malheureusement, cette mesure très instructive n'est pas réalisable dans le cas du ^{111}Cd. La corrélation (e_k^-—γ) théorique, non perturbée est déjà presque isotrope et les facteurs d'atténuation ne peuvent donc être mesurés avec la précision nécessaire.

Les mesures du ^{111}Cd ont été réalisées à l'Institut de Physique de l'Ecole Polytechnique Fédérale de Zurich, en collaboration avec M. Fritz Gimmi. Je remercie M. le Professeur Scherrer pour l'intérêt constant qu'il a accordé à ces travaux et l'équipe du Cyclotron pour les nombreuses irradiations effectuées.

Intervention de M. Abragam. — L'affirmation que les coefficients d'atténuation G_k sont les mêmes pour les corrélations γ-γ et γ-e^- est correcte pour les sources polycristallines. Il n'est pas sûr qu'il en soit de même pour un monocristal.

Réponse de M. Heer. — Pour des monocristaux les formules tenant compte de l'interaction du moment quadripolaire avec le cristal sont beaucoup plus compliquées. On ne peut plus dire que les corrélations (γ-γ) et (γ-e^-) sont « semblables ». Mais cependant les facteurs $G_{k_1 k_2}^{\mu_1 \mu_2}$, qui ne dépendent pas des deux transitions, sont les mêmes pour les deux corrélations.

Intervention de M. Grace. — Maintenant que les moments des dipôles magnétiques nucléaires de certains états excités sont connus avec précision, il serait possible d'utiliser la perturbation de la corrélation angulaire pour déterminer le champ magnétique à l'intérieur d'un cristal unique. Bien que l'on connaisse (par exemple à la suite d'expériences de résonance paramagnétique) la grandeur de ces champs pour l'état fondamental des atomes stables du cristal, on sait peu de chose des champs magnétiques produits pendant la décroissance radioactive, pendant laquelle le changement de la charge nucléaire produit un réarrangement des couches électroniques. Des renseignements sur ces champs seraient particulièrement intéressants dans le cas des transitions par capture K (ou l'effet Auger donne lieu à une ionisation multiple) dans les cristaux ioniques : pour ceux-ci, la neutralisation des atomes ionisés serait plus lente que dans les cristaux métalliques.

Réponse de M. Heer à M. Grace. — Nous avons considéré cette possibilité et pour voir si l'interaction magnétique joue un rôle dans nos expériences avec un monocristal, nous avons, par une méthode des moindres carrés, calculé en même temps les interactions magnétiques et électriques. On trouve que, si l'interaction magnétique est présente, elle doit être très petite.

BIBLIOGRAPHIE.

[1] Abragam A. et Pound R. V. — *Phys. Rev.*, 1953, **89**, 1306.
[2] Abragam A. et Pound R. V. — *Phys. Rev.*, 1953, **92**, 943.
[3] Aeppli H., Albers-Schönberg H., Frauenfelder H. et Scherrer P. — *Helv. Phys. Acta*, 1952, **25**, 339.
[4] Albers-Schönberg H., Alder K., Braun O., Heer E. et Novey T. B. — *Phys. Rev.*, 1953, **91**, 1287.
[5] Albers-Schönberg H., Heer E., Novey T. B. et Rüetschi R. — *Phys. Rev.*, 1953, **91**, 199.
[6] Biedenharn L. C. et Rose M. E. — *Rev. Mod. Physics*, 1953, **25**, 729.
[7] Bothe W. — *Handb. Physik*, Bd. 22/2, Springer, Berlin, 1933.
[8] Fierz M. — *Helv. Phys. Acta*, 1949, **22**, 489.
[9] Frankel S. — Communication privée.
[10] Gardener J. W. — *Proc. Phys. Soc.*, 1951, A **64**, 238.
[11] Goldberg N. et Frankel S. — *Phys. Rev.*, 1954, **93**, 1425.
[12] Langer L., Moffat R. et Price H. — *Phys. Rev.*, 1949, **76**, 1725.
[13] McGowan F. K. — *Phys. Rev.*, 1953, **92**, 524.
[14] Rose M. E. — O.R.N.L., 1555.
[15] Rose M. E., Biedenharn L. C. et Arfken G. B. — *Phys. Rev.*, 1952, **85**, 5.
[16] Roy R. R. et Goes M. L. — *Nature*, 1953, **172**, 360.
[17] Siegbahn K. — *Arkiv Fysik*, 1952, **4**, 223.
[18] Walter M., Huber O. et Zünti W. — *Helv. Phys. Acta*, 1950, **23**, 697.
[19] Ward A. H. et Walker D. — *Nature*, 1949, **163**, 168.

INFLUENCE DES ÉLECTRONS PÉRIPHÉRIQUES DE L'ATOME SUR LA CORRÉLATION ANGULAIRE DE RAYONNEMENTS NUCLÉAIRES SUCCESSIFS

Par ERNST HEER,
École Polytechnique Fédérale, Zürich.

Summary. — The influence of the magnetic dipole moment and the electric quadrupole moment of the electron shell on the angular correlation of successive nuclear radiations is discussed. As an example the experiments on the ^{111}Cd gamma-gamma cascade are examined. It is shown that most of the observed effects can be explained by the electric quadrupole interaction with surrounding electric fields. In some cases magnetic dipole interaction with the excited electron shell may also be of importance. Methods are described to measure nuclear moments of excited states on one hand and to measure the undisturbed angular correlation on the other hand.

Introduction. — La distribution angulaire d'un rayonnement nucléaire est anisotrope seulement lorsque les noyaux dans l'état initial sont entièrement ou partiellement polarisés. On a réussi à obtenir cette polarisation, récemment, avec des champs élevés, dans des cristaux spéciaux et à des températures de 0,01° K (« alignement nucléaire »). Elle se produit aussi lorsque les états initiaux sont obtenus par des processus nucléaires avec un rayonnement corpusculaire dirigé (« distribution angulaire »). Si un noyau émet quasi simultanément deux rayonnements, on peut — au moins en pensée — le polariser, en ne considérant que les désintégrations où le premier quantum est émis dans une direction bien déterminée (« corrélation angulaire »). Nous voulons, dans ce qui suit, examiner de plus près la corrélation angulaire (en abrégé C. A.), mais en gardant bien en vue que les résultats, correctement transposés, sont aussi valables pour les deux autres cas.

La mesure des corrélations angulaires est aujourd'hui un moyen, souvent utilisé en spectroscopie nucléaire, pour déterminer les schémas de désintégration. D'après la distribution angulaire que l'on peut ramener à la forme

$$W(\theta) = \sum_k a_k P_k(\cos\theta), \tag{1}$$

on peut, par comparaison avec la théorie [13] obtenir des conclusions sur les propriétés des niveaux participants (spin et parité) et des rayonnements.

Les mesures des rayonnements γ donnent des renseignements sur l'ordre de multipolarité; celles des rayons β renseignent sur le degré d'interdiction et sur les éléments de matrice participant à la transition. Des expériences récentes [4], [7], [8] sur lesquelles je reviendrai encore, permettent aussi de déterminer les moments nucléaires des niveaux intermédiaires de période très courte.

La précision avec laquelle on peut déterminer ces grandeurs (en particulier celle des paramètres continus : rapport des mélanges de différents éléments de matrice, ou moments nucléaires) est en rapport direct avec la précision avec laquelle on peut mesurer le coefficient a_k. A côté des difficultés habituelles de la géométrie [23] [24], (dimension finie des détecteurs et de la source) et de la diffusion, l'effet des champs extranucléaires sur la corrélation angulaire joue souvent un grand rôle [17], [19]. Cet effet a lieu pendant le temps que le noyau passe au niveau intermédiaire. Les champs électriques et magnétiques voisins modifient les nombres d'occupation des différents nombres quantiques magnétiques (par rapport à l'axe du premier quantum comme axe de quantification), par leurs interactions avec le moment nucléaire électrique quadrupolaire ou respectivement magnétique dipolaire. Ils influencent ainsi le degré de polarisation et, par conséquent, la corrélation angulaire.

Dans différents travaux, notamment de Alder [11], [12], on montre que l'on peut écrire la corrélation atténuée :

$$W(\theta) = \sum_k a_k G_k P_k(\cos\theta). \tag{2}$$

Les « facteurs d'atténuation » G_k dépendent du spin I du niveau intermédiaire, du mode d'interaction (électrique ou magnétique) et de l'intensité de l'interaction.

Examinons particulièrement le cas, intéressant pour nous, d'atomes libres dont le cortège électronique peut produire, à l'endroit où se trouve le noyau, des champs électriques aussi bien que magnétiques. Les directions des champs dont on fait la moyenne sur un grand nombre d'atomes, sont distribuées statistiquement, et l'on obtient dans ce cas, pour les facteurs G :

$$G_k = \sum_{FF'} \frac{(2F+1)(2F'+1)[W(IJkFF'I)]^2}{1+(\omega_{FF'}\tau_N)^2}; \tag{3}$$

I, J et F sont les moments angulaires totaux du noyau, du cortège électronique et de l'atome, τ_N est la période de l'état intermédiaire et $W(IJkFF'I)$

ce qu'on appelle un coefficient de Racah. Dans le cas magnétique, la structure hyperfine est donnée par

$$\omega_{FF'} = \frac{1}{2} A [F(F+1) - F'(F'+1)], \qquad (4)$$

où la constante de couplage A a été calculée pour quelques cas par Kopfermann [22]. Si, d'autre part, la distribution des charges des électrons n'a pas la symétrie sphérique, on obtient un terme additionnel électrique :

$$\omega_{FF'} = -\frac{3}{8} e^2 \overline{\left(\frac{3\cos^2\theta_e - 1}{r_e^3}\right)} \times Q \frac{\left\{\begin{array}{l}[F(F+1) - F'(F'+1)] \\ \times \{[F(F+1) + F'(F'+1)] \\ \qquad -2I(I+1) - 2J(J+1) + 1\}\end{array}\right\}}{I(2I-1)J(2J-1)}. \qquad (5)$$

Ici Q est le moment quadrupolaire du noyau. L'expression pour l'asymétrie de la distribution des charges des électrons a été calculée par Casimir [14] pour quelques configurations. Pour les deux modes d'interaction, électrique et magnétique, les facteurs d'atténuation sont de la forme :

$$G_k = a + \sum_{F \neq F'} \frac{b_{FF'}}{1 + (\omega_{FF'}\tau_N)^2}. \qquad (6)$$

Pour $\omega_{FF'}\tau_N = 0$, les coefficients G_k deviennent égaux à 1; on mesure alors la corrélation angulaire non perturbée, pour $\omega_{FF'}\tau_N \sim 1$ on a une influence sensible et pour le cas limite de l'interaction forte $\omega_{FF'}\tau_N \gg 1$, le facteur d'atténuation tend vers la limite a. Cela a pour conséquence que, même pour une interaction infiniment forte, la corrélation ne peut pas devenir isotrope.

$\omega_{FF'}\tau_N \sim 1$ signifie, par contre, qu'avec une période moyenne de 10^{-7} s (par exemple ^{111}Cd), il suffit d'une séparation hyperfine de l'ordre de grandeur de $10^7\ s^{-1} \sim 3.10^{-4}\ cm^{-1}$ pour perturber d'une façon appréciable la corrélation. Ou inversement, avec une grande séparation hyperfine d'environ 1 cm^{-1}, il faut déjà tenir compte d'une atténuation pour une période de 10^{-11} s. Comme beaucoup de cascades comportent une telle période pour le niveau intermédiaire et comme la mesure de la corrélation angulaire n'a de valeur, comme aide pour la spectroscopie nucléaire, que lorsqu'on mesure la corrélation non perturbée, il est justifié d'examiner de plus près l'influence du cortège électronique sur la corrélation. Celle-ci devient encore plus intéressante par le fait qu'elle permet de déterminer des moments nucléaires d'états de vie très courte.

Effet du moment magnétique du cortège électronique sur la corrélation angulaire. — Dans ce paragraphe, on ne peut, en fait, rendre compte que de résultats négatifs, car l'effet du moment magnétique du cortège électronique n'a pas encore été prouvé directement, bien qu'il existe très certainement dans certaines conditions.

Un premier essai a été fait en 1951 par Frauenfelder [5], [16] sur ^{111}Cd. Des expériences avec cette cascade ont montré que la fonction de corrélation dépend fortement du dispositif expérimental [19]. Des préparations métalliques montrèrent, en général, une atténuation plus faible que des préparations de cristaux ioniques. L'hypothèse était alors la suivante : le Cd ne possède, en principe, dans la couche la plus extérieure, que des électrons 2s et est, par conséquent, diamagnétique. On ne devrait donc pas, *a priori*, s'attendre à une interaction magnétique du noyau avec le cortège. Mais le niveau le plus élevé de ^{111}Cd étant produit par la capture K de ^{111}In, le cortège électronique peut, par conséquent, être perturbé (ionisé ou excité) et peut posséder, pendant un certain temps, un moment magnétique. La différence entre les préparations métalliques et des cristaux ioniques peut alors s'expliquer par les durées de vie différentes du cortège électronique excité dans ces milieux.

La théorie nous donne une méthode simple pour vérifier cette hypothèse. Elle consiste dans une « expérience de découplage magnétique », qui repose sur l'effet Paschen-Back. On soumet la préparation à un champ magnétique fort, satisfaisant à la condition :

$$H \gg \omega_{FF'} \frac{h}{\mu_e} \qquad (7)$$

dans la direction d'un des détecteurs. Un tel champ magnétique n'a, en lui-même, pas d'influence sur la corrélation angulaire, mais il peut rompre les couplages entre le moment magnétique du cortège et celui du noyau, et ainsi supprimer l'atténuation. Toutes nos tentatives pour mettre cet effet en évidence ont été sans résultat. Nous devons en tirer la conclusion que l'hypothèse simple mentionnée ci-dessus ne peut pas expliquer les atténuations observées.

La raison principale pour laquelle l'expérience de découplage n'avait pas réussi était le fait qu'il ne s'agissait pas d'atomes libres, comme la théorie le suppose, mais d'ions dans un réseau cristallin. Dans un travail paru l'année dernière, de Abragam et Pound [3], on examine l'expérience de découplage sur des atomes non libres. Les auteurs montrent que, si le cortège électronique est couplé avec le champ du cristal, on ne peut pas obtenir un découplage appréciable avec un champ satisfaisant à la condition (7).

Il semble aujourd'hui que l'on puisse expliquer tous les effets observés sur ^{111}Cd avec la seule interaction quadrupolaire; je développerai ce point de vue dans le paragraphe suivant. L'hypothèse du cortège électronique excité a été essayée une autre fois dans le but d'obtenir l'explication de la distri-

bution angulaire isotrope que l'on a mesurée sur certaines sources cristallines. Une corrélation, en principe anisotrope, ne peut pas devenir isotrope par l'action de champs stationnaires distribués statistiquement en direction. On voit cela tout de suite sur la formule (6). Cependant, comme plusieurs expérimentateurs ont publié des corrélations isotropes [5], [19], [21], [25], il semble tentant d'expliquer celles-ci par l'interaction non stationnaire de couches électroniques se remplissant progressivement.

L'examen de l'interaction magnétique semble être plus fructueux avec des noyaux dont le cortège électronique possède un moment magnétique propre, comme, par exemple, ^{60}Ni. La période de l'état intermédiaire de cette cascade n'est pas connue, mais elle est, en tout cas, inférieure à 10^{-9} s. Des expériences avec des sources métalliques magnétisées et avec des sources polycristallines paramagnétiques, ont donné la même corrélation. Dans un cas, tous les moments du cortège électronique sont parallèles, dans l'autre, ils sont distribués statistiquement. On s'attend, par conséquent, à des corrélations différentes lorsque $\omega_{FF'}\tau_N \sim 1$. Comme l'effet n'existe pas, on peut, en supposant que $\omega_{FF'} = 10^{10}$ cycles, conclure que $\tau_N < 10^{-10}$ s. Des expériences semblables faites à Oxford en comparant des sources métalliques et des sels ont donné des résultats analogues.

Bien que, dans ce cas aussi, l'interaction magnétique n'ait pas de signification — cette fois-ci à cause de la période trop courte — on doit cependant s'attendre à ce que, avec d'autres noyaux dont les couches électroniques possèdent un moment magnétique et dont les états intermédiaires ont des périodes de 10^{-9} à 10^{-7} s, il soit possible de montrer le couplage magnétique entre le noyau et les électrons périphériques. Des expériences de ce genre (par exemple sur les cascades de ^{170}Tm et ^{181}Ta) sont prévues à Zürich.

A la fin de ce paragraphe, examinons encore le problème de la détermination du moment magnétique dipolaire au niveau intermédiaire de la cascade. Si la période de cet état est plus longue que environ 10^{-8} s, il suffit d'utiliser des champs magnétiques extérieurs de l'ordre de grandeur de 20 000 gauss pour obtenir un effet appréciable. On peut tirer du facteur d'atténuation la fréquence de Larmor $\omega = \dfrac{\mu H}{I\hbar}$ et en déduire le moment magnétique μ. Avec des états intermédiaires de périodes très courtes, inférieures à 10^{-8} s, les champs dont on peut disposer ne suffisent plus. Par contre, la structure hyperfine magnétique pourrait produire une atténuation suffisante. On pourrait calculer le moment magnétique à partir des expressions (3) et (4) si l'on connaissait les constantes de couplage A. La grande difficulté est, cependant, que les constantes A ne peuvent être calculées que pour des atomes libres. Des sources où les atomes actifs sont « libres » sont très difficiles à mettre au point. Ainsi la détermination du moment magnétique du noyau, à partir de son interaction avec le moment magnétique du nuage électronique, doit être une expérience extrêmement difficile.

L'effet du moment quadrupolaire des couches électroniques sur la corrélation angulaire. — Pour expliquer les résultats sur ^{111}Cd, l'hypothèse de l'interaction quadrupolaire électrique est plus fructueuse que celle de l'interaction dipolaire magnétique. Les expériences avec un monocristal [7] le montrent de la manière la plus convaincante. Les atomes actifs ont été introduits dans un monocristal tétragonal d'indium. La corrélation a été ensuite mesurée comme fonction de l'orientation de l'axe de symétrie du cristal par rapport au dispositif des compteurs. Si l'axe de symétrie est perpendiculaire au plan des détecteurs, on obtient une faible atténuation. S'il est, par contre, parallèle à l'un des rayons γ, on mesure la corrélation angulaire non perturbée. On a calculé pour le couplage quadrupolaire la valeur $\omega = 14{,}1 \cdot 10^6$ cycles, d'après l'allure de la courbe. Si l'on veut en tirer le moment quadrupolaire lui-même, il faut dans l'équation

$$\omega = \frac{eQ}{4}\,\frac{\operatorname{grad} E}{\hbar}\,\frac{6\tau_N}{I(2I-1)} \tag{8}$$

remplacer le gradient du champ par sa valeur. Le calcul de cette grandeur dans un cristal est très difficile car on ne connaît pas exactement la déformation du cortège électronique des atomes. Des essais ont été faits avec des réseaux cristallins très simples [15]; le cas de l'indium est cependant sans espoir. Par conséquent, il nous est seulement possible de faire une estimation très grossière du moment quadrupolaire. On obtient

$$Q \sim 10^{-24}\ \text{cm}^2.$$

Il semble que l'on pourrait avoir plus de succès avec une mesure sur une source gazeuse, car le calcul du couplage quadrupolaire, pour des atomes et des molécules libres, est possible avec une certaine précision. Comme nous l'avons déjà dit, la mise au point d'une source suffisamment intense d'atomes radioactifs « libres » est extrêmement difficile. De plus, il subsiste ici aussi la difficulté de principe que les couches électroniques peuvent être perturbées pendant un certain temps après un processus de désintégration β et que, pour cette raison, on n'en connaît pas exactement les fonctions d'ondes.

Nous revenons maintenant sur la question de savoir si, dans le cas de ^{111}Cd, le cortège électronique est excité pendant un temps suffisamment long pour donner une interaction magnétique avec le noyau. Si cela était le cas, on aurait comme inter-

action, au lieu de la formule (8) l'expression

$$\omega_m = \frac{eQ}{4}\,\frac{\mathrm{grad}\,E}{h}\,\frac{3m^2 - I(I+1)}{I(2I-1)} + mg\mu_k\frac{H}{h} = \omega_E + \omega_M, \qquad (9)$$

où H est le champ que le cortège électronique produit à l'endroit où se trouve le noyau. Comme ω_E et ω_M ont une dépendance différente du nombre quantique m, on peut calculer séparément les deux interactions, par exemple, par une expérience sur un monocristal. Un tel calcul montre que s'il existe vraiment une interaction magnétique, celle-ci n'atteint pas quelques pour-cent de l'interaction électrique.

Il semble alors que l'on puisse expliquer les effets observés sur ^{111}Cd avec la seule interaction quadrupolaire. Des explications analogues ont été récemment tentées dans d'autres cas (^{204}Pb [18] et ThC [2]). Quelques autres cascades où la corrélation mesurée ne correspondait pas à la corrélation théorique ont été interprétées comme subissant la perturbation de l'interaction quadrupolaire. Il est cependant nécessaire de faire attention car une mauvaise géométrie (^{60}Ni [6], [23]), une diffusion et des rayonnements parasites (^{106}Pd [1], [20]) peuvent conduire à une méprise.

Comme nous l'avons vu au début, il est important pour la spectroscopie nucléaire de pouvoir mesurer la distribution angulaire non perturbée. Les expériences sur ^{111}Cd ont montré quelles sont les sources qui remplissent cette condition :

1° Des monocristaux à symétrie axiale dont l'axe de symétrie est parallèle à l'un des compteurs;

2° Des cristaux cubiques à condition que l'ensemble du cristal soit suffisamment grand pour que les effets de surface ne jouent aucun rôle;

3° Des sources liquides [9], [10], [2] où le champ électrique est modifié par le mouvement brownien avec une telle rapidité que sa valeur est nulle si l'on en prend la moyenne sur la période de la précession de Larmor.

Les expériences sur ^{111}Cd ont été faites en collaboration avec M. Albers-Schönberg; celles sur ^{60}Ni avec M. Ruetschi. Je voudrais exprimer mes remerciements à M. le Professeur Scherrer pour l'intérêt constant qu'il a manifesté pour ce travail, ainsi qu'à l'équipe du cyclotron pour les nombreuses irradiations.

Intervention de M. Abragam. — M. Heer pourrait-il donner quelques précisions sur ses mesures sur certaines corrélations perturbées que d'autres chercheurs ont rapportées comme isotropes.

Réponse de M. Heer. — La seule manière correcte d'étudier les corrélations « isotropes » est de faire une expérience avec des coïncidences retardées. Nous avons eu l'intention de la faire à Zürich, mais notre appareillage s'est avéré insuffisant. Nous avons, d'autre part, mesuré les corrélations intégrales dans toutes les préparations où des corrélations inférieures à la corrélation minimale ont été signalées. Nos résultats indiquent que les corrélations ne sont pas isotropes, elles sont toutes dans la région de la corrélation minimale, et il est très difficile de dire si elles sont vraiment en dessous de la corrélation minimale.

BIBLIOGRAPHIE.

[1] Abragam A. et Pound R. V. — *Phys. Rev.*, 1953, **90**, 993.
[2] Abragam A. et Pound R. V. — *Phys. Rev.*, 1953, **89**, 1306.
[3] Abragam A. et Pound R. V. — *Phys. Rev.*, 1953, **92**, 943.
[4] Aeppli H. Albers-Schönberg H., Frauenfelder H. et Scherrer P. — *Helv. Phys. Acta*, 1952, **25**, 339.
[5] Aeppli H., Bishop A. S., Frauenfelder H., Walter M. et Zünti W. — *Phys. Rev.*, 1951, **82**, 550.
[6] Aeppli H., Frauenfelder H., Heer E. et Ruetschi R. — *Phys. Rev.*, 1952, **87**, 379.
[7] Albers-Schönberg H., Alder K., Braun O., Heer E. et Novey T. B. — *Phys. Rev.*, 1953, **91**, 1287.
[8] Albers-Schönberg, Alder K., Heer E., Novey T. B. et Scherrer P. — *Proc. Phys. Soc. London*, 1953, A **66**, 952.
[9] Albers-Schönberg H., Debrunner P., Heer E. et Scherrer P. — A paraître.
[10] Albers-Schönberg H., Heer E., Gimmi F. et Novey T. B. — *Helv. Phys. Acta*, 1953, **26**, 599.
[11] Alder K. — *Helv. Phys. Acta*, 1952, **25**, 235.
[12] Alder K., Albers-Schönberg H., Heer E. et Novey T. B. — *Helv. Phys. Acta*, 1953, **26**, 761.
[13] Biedenharn L. C. et Rose M. E. — *Rev. Mod. Physics*, 1953, **25**, 729.
[14] Casimir H. — *Teylers Tweede Genootschap*, 1936, **11**.
[15] Cohen M. H. — *Phys. Rev.*, 1953, **90**, 348.
[16] Frauenfelder H. — *Phys. Rev.*, 1951, **82**, 549.
[17] Frauenfelder H. — *Ann, Rev. Nucl. Sc.*, 1953, **2**, 129.
[18] Frauenfelder H., Lawson Jr, J. S., Jentschke W. et de Pasquali G. — *Phys. Rev.*, 1953, **92**, 1241.
[19] Heer E. — *Physica*, 1952, **18**, 1215.
[20] Klemma E. D. et McGowan F. K. — *Phys. Rev.*, 1953, **92**, 1469.
[21] Kluyver J. C. et Deutsch M. — *Phys. Rev.*, 1952, **87**, 203.
[22] Kopfermann H. — *Kernmomente*. Akademische Verlagsgesellschaft, Leipzig, 1940.
[23] Lawson J. S. Jr et Frauenfelder H. — *Phys. Rev.*, 1953, **91**, 649.
[24] Rose M. E. — *Phys. Rev.*, 1953, **91**, 610.
[25] Steffen R. M. — *Phys. Rev.*, 1953, **90**, 1119.

L'ORIENTATION NUCLÉAIRE A BASSE TEMPÉRATURE ET SES APPLICATIONS

Par H. HALBAN,

Clarendon Laboratory, Oxford.

Summary. — A number of methods of orienting nuclei have been conceived so far. They lead either to polarization or to alinement. Two of them have already lead to successful experiments. They both obtain orientation through magnetic H. F. S. fields in paramagnetic substances. Radioactive nuclei oriented in this way show anisotropic emission of γ rays. A study of the anisotropy allows the multipole character of the γ ray transition to be determined. The determination of the plane of polarization makes a distinction between magnetic and electric multipoles possible. In certain cases one can also determine the character of a β ray transition preceeding the emission of γ rays. Future possibilities are discussed.

En 1934 et 1935 Gorter [1], Kurti et Simon [2] ont attiré l'attention sur la possibilité d'obtenir des températures pour lesquelles

$$\frac{H\mu}{KTI} \sim 1, \qquad (1)$$

où μ est le moment magnétique d'un noyau avec spin I qui se trouve en équilibre avec un système à la température T dans un champ magnétique H. Cette condition serait obtenue pour un noyau avec $I = 1$ et un moment magnétique de trois magnétons nucléaires dans un champ de 10^5 gauss à une température de 0,01° K.

Sous des conditions pareilles les $2I + 1$ états possibles d'orientation quantifiée d'un noyau avec les nombres quantiques $I \geqq m_z \geqq -I$ n'ont plus la même probabilité d'occupation et le système va montrer une polarisation nucléaire macroscopique.

Un tel phénomène est évidemment de très grand intérêt pour la Physique nucléaire puisqu'il permet de déterminer, pour les phénomènes d'émission et d'absorption, des distributions angulaires et des sections efficaces [3] dans un système de coordonnées dont le spin nucléaire est un axe.

Cependant, on n'a pas encore réussi à orienter des noyaux par interaction directe avec un champ magnétique extérieur. Ceci est dû au fait que des températures de l'ordre de 0,01° K peuvent seulement être obtenues par la méthode de désaimantation adiabatique. Évidemment un système refroidi de cette manière serait réchauffé si on le soumettait de nouveau à une aimantation. On est donc forcé d'envisager une solution plus compliquée (*fig.* 1).

Le système A est refroidi à une très basse température par désaimantation adiabatique (champ H). Il est en contact thermique avec le système B. Le système B contient les noyaux que l'on veut orienter, mais — contrairement au système A — il n'est pas paramagnétique. Après l'établissement de l'équilibre thermique les noyaux de B sont orientés par aimantation par le champ H_2.

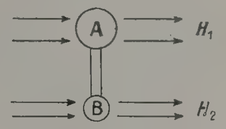


Fig. 1. — Schéma de l'orientation par interaction directe d'un champ extérieur.

Évidemment A et B doivent être suffisamment éloignés pour que le champ H_2 ne réchauffe pas A.

Le problème d'établir d'une façon suffisamment rapide l'équilibre thermique entre A et B à des températures de l'ordre de 0,01° K n'est malheureusement pas encore résolu.

Cependant, plusieurs suggestions ingénieuses pour orienter autrement des noyaux ont été proposées (1). Elles sont toutes basées sur des interactions entre noyaux et électrons. Ce fait est l'une des deux

(1) On distingue deux sortes d'orientation nucléaire :

1° La polarisation ↑ ↑↑ ↑↑.

2° L'alignement ⇅ ⇅ ⇅, c'est-à-dire un état d'ordre dans lequel des orientations parallèles et antiparallèles ont la même probabilité.

Comme nous allons le voir plus tard la plupart des effets d'orientation nucléaires dépendent d'un $\cos^2$ d'un angle. Ainsi, polarisation et alignement sont également utilisables pour presque toutes les expériences.

raisons qui placent le problème de l'orientation nucléaire dans le cadre de ce Colloque. D'autre part, comme nous allons voir dans l'exposé de M. Grace, il existe des interactions entre des noyaux orientés et leurs cortèges électroniques qui peuvent détruire l'orientation nucléaire, mais qui — une fois correctement interprétés — deviennent des phénomènes intéressants qui peuvent nous fournir des données importantes.

Les deux méthodes d'orientation nucléaire qui ont déjà réussi se servent des champs magnétiques considérables (10^5-10^6 gauss) qui existent autour des noyaux dans les atomes dont le cortège électronique possède un moment magnétique.

Une méthode a été proposée indépendamment par Gorter [4] et par Rose [5]. Dans la variante due à Rose un sel paramagnétique est refroidi à une température de l'ordre de 0,01° K par désaimantation adiabatique de 30 000 gauss à quelques centaines de gauss. Le petit champ résiduel est suffisant pour polariser les moments magnétiques électroniques. Par interaction de structure hyperfine, les noyaux sont à leur tour polarisés. La possibilité de cette méthode a été démontrée à Oxford [6].

Dans certains cas l'énergie totale d'un système cristallin peut dépendre de l'orientation des noyaux relatifs à l'axe cristallin. Dans la méthode proposée par Bleaney [8] cette dépendance se produit par l'interaction entre le champ électrique cristallin inhomogène et les moments magnétiques électroniques, par l'intermédiaire des orbites électroniques. C'est le même mécanisme qui produit dans ces cristaux une anisotropie de la susceptibilité. En absence de tout champ extérieur un axe de quantification est défini par les champs électriques produits par les ions voisins dans le cristal.

L'interaction est parfois si forte qu'à des températures comparativement élevées (10-100° K) seulement les orientations électroniques ayant le minimum d'énergie sont occupées. Si les champs électriques ont une symétrie axiale les moments magnétiques électroniques seront alignés (à cause de la dégénérescence de Krahmers ils seront alignés et non polarisés) relatif à l'axe d'un monocristal. Par l'intermédiaire de la structure hyperfine les noyaux vont à leur tour être alignés si le cristal est refroidi à des températures de l'ordre de 0,01° K. Les cristaux étant paramagnétiques cette température est facilement obtenue par désaimantation de 30 000 gauss à 0.

Pound [9] a proposé d'utiliser la structure hyperfine associée avec le moment quadripolaire des noyaux pour obtenir des noyaux alignés. En absence d'autres champs la dégénérescence de l'orientation nucléaire peut être soulevée par l'interaction du moment quadripolaire avec le gradient d'un champ électrique. Pour obtenir par cette structure hyperfine une séparation suffisante des niveaux pour orienter des noyaux à 0,01° K il faut des gradients de l'ordre de 10^{15} e. s. u. Ils sont produits par la distribution assymétrique des électrons de l'entourage immédiat du noyau dans quelques cas de liaison homopolaire. Dans certains composés organiques la direction de ces gradients est la même relative à l'axe cristallin autour de tous les noyaux équivalents. Ainsi, les conditions pour obtenir un alignement nucléaire dans un monocristal sont remplies. Cependant, les efforts faits pour réaliser cette méthode n'ont pas encore abouti.

Je propose de limiter la discussion des applications de l'orientation nucléaire à l'étude des distributions angulaires de rayons γ émis par des noyaux polarisés ou alignés. La théorie a été développée par Spiers [7], par Steenberg [10] et par Tolhoek et Cox [11].

Considérons tout d'abord un cas idéal : Un système de noyaux excités identiques de spin I et complètement orientés. Supposons que chaque noyau émette un seul quantum γ qui emporte le moment i.

La distribution angulaire de la radiation sera symétrique autour de l'axe d'orientation, et elle aura la forme

$$I(\theta) = a \cos^2(\theta) + b \cos^4(\theta) + \ldots 1 \cos^L(\theta), \qquad (2)$$

où

$$L \quad i \quad \text{et} \quad L \quad I.$$

Les coefficients a, b, etc. dépendant de i et I, et une mesure de la distribution angulaire nous permet de déterminer le caractère multipolaire de la transition, ainsi que I.

Seules les puissances paires de $\cos(\theta)$ entrent dans (2). Ceci rend l'emploi des noyaux alignés aussi utiles pour la détermination de i que celui des noyaux polarisés. Il n'y a, en effet, que peu de problèmes qui nécessitent une polarisation nucléaire. Le manque d'espace ne nous permet pas d'en parler dans cet exposé.

Quand on a établi le caractère multipolaire d'une transition γ, c'est-à-dire le changement de moment angulaire qui lui est associé, il faut encore savoir s'il s'agit d'un multipôle électrique ou magnétique. Avec des noyaux orientés il est immédiatement possible de résoudre cette question. En effet, les rayons γ émis par des noyaux orientés sont polarisés et une détermination du plan de polarisation nous permet de distinguer entre multipôles magnétiques ou électriques.

Avant d'arriver à un cas réel il faut encore préciser deux points. D'abord nous avons implicitement supposé que l'on oriente un noyau excité qui émet un seul rayon γ. Cependant, aucun cas d'isomérie n'a encore été étudié par la méthode d'orientation nucléaire. Jusqu'ici on a exclusivement orienté des

noyaux radioactifs du type général :

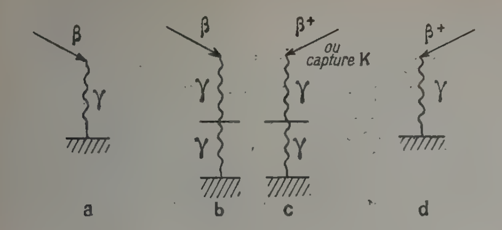


Fig. 2. — Schémas de noyaux orientés à basses températures.

Dans tous ces cas un nouveau problème se présente. Dans la transition β ou dans la capture K un changement de spin peut avoir lieu. Ce phénomène est discuté en détail dans les théories de la désintégration β.

Du point de vue des expériences avec des noyaux orientés ce problème présente à la fois une difficulté et une nouvelle possibilité. Si un noyau orienté subit un changement de moment angulaire pendant une transition β il peut également subir un changement d'orientation ([2]). Après la transition, le noyau produit par la désintégration ne sera donc plus nécessairement parallèle à la direction originale d'orientation. Il va maintenant se mouvoir par précession autour de cette direction primitive. L'équation (2) ne décrit donc plus correctement la distribution angulaire d'une radiation γ émise par le noyau formé par la transition β. La distribution devient une fonction plus compliquée tenant compte du changement de spin dans la transition β. Ainsi, des mesures de précision de la distribution angulaire permettent souvent de déterminer à la fois le caractère multipôlaire de la radiation γ et le changement de spin accompagnant la transition β.

Enfin, pour notre expérience idéale, nous avons fait l'hypothèse que les noyaux sont complètement orientés. Cette hypothèse ne sera que difficilement réalisée dans les conditions de laboratoire. Le degré d'orientation dépend toujours d'un facteur de Boltzmann,

$$B = \frac{H\mu}{KTI},$$

où H est le champ magnétique responsable de la structure hyperfine, μ le moment magnétique des noyaux et I leur spin. L'orientation ne sera donc complète que si $B > 1$, ce qui n'est pas le cas aux températures atteintes jusqu'ici.

Dans le cas où $B \neq 1$ les coefficients a, b, etc. de (2) dépendent non seulement de i et I, mais aussi de B. Ceci signifie d'une part une compli-

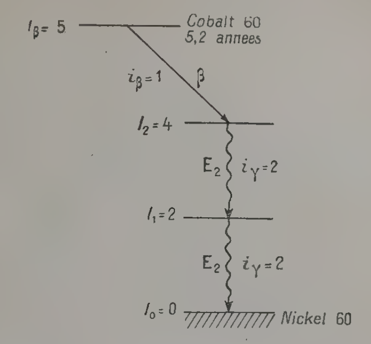


Fig. 3. — Schéma de désintégration du Cobalt 60.

cation et d'autre part une possibilité de déterminer $\frac{\mu}{I}$ pour les noyaux orientés ([3]), pourvu que l'on détermine la distribution angulaire pour plusieurs températures.

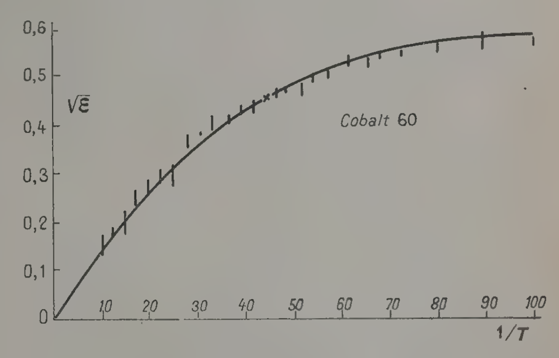


Fig. 4. — Variation d'anisotropie avec la température montrant les points expérimentaux et la courbe théorique pour $I_\beta = 5$, $i_\beta = 1$ à $\frac{1}{T} = 44{,}6$.

La première expérience d'orientation nucléaire a été faite avec la méthode de Bleaney par Daniels, Grace et Robinson [12]. Dans un monocristal de $CuSO_4.Rb_2SO_4.6H_2O$ on a introduit un peu de ^{60}Co qui remplace le cuivre dans le réseau cristallin. On a choisi ^{60}Co parce que son schéma de désintégration est bien connu (*fig.* 3). Ainsi, la première expérience servait surtout à démontrer que la méthode d'orientation nucléaire peut donner des résultats utiles. La figure 4 montre la distribution

([2]) En effet, une réorientation *doit* être associée avec un changement ΔI de moment angulaire dans tous les cas où $\Delta I \neq I_1 - I_2$.

([3]) Pour éviter tout malentendu : c'est le moment magnétique du noyau orienté primaire, c'est-à-dire de l'émetteur β sur la figure 2 qui entre dans ce B et non celui de l'état excité du produit de désintégration.

angulaire qui fut obtenue. L'anisotropie est exprimée par $\sqrt{\varepsilon}$, où

$$\varepsilon = \frac{\left[W\left(\frac{\pi}{2}\right) - W(0)\right]}{W\left(\frac{\pi}{2}\right)},$$

$W(\theta)$ étant l'intensité de radiation γ observée sou l'angle θ avec l'axe d'alignement.

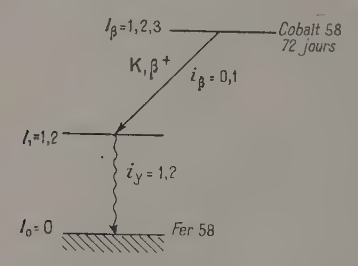


Fig. 5. — Schéma de désintégration du Cobalt 58.

Comme seul résultat inconnu cette mesure donnait une valeur de 3,5 ± 0,5 pour le moment magnétique de ^{60}Co. Cette expérience a été également réalisée à Leyden [13].

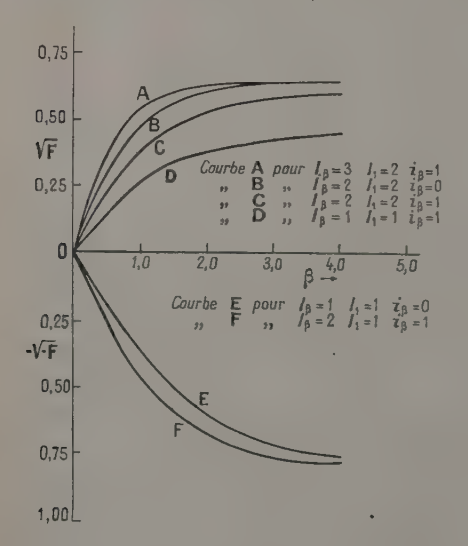


Fig. 6. — Variation d'anisotropie avec β (théorique) pour le Cobalt 58.

Bishop et al. [14] ont déterminé la plaine de polarisation des rayons γ émis par des noyaux alignés de ^{60}Co et ont ainsi confirmé que les deux transitions γ sont des quadripôles électriques.

Le schéma de désintégration de ^{58}Co n'était pas complètement connu. (*fig* 5). On savait que I_0 devrait être zéro puisque ^{58}Fe est un noyau pair-pair. Des mesures de conversion interne et une limite supérieure de 10^{-7} s pour la vie moyenne de l'état excité de ^{58}Fe laissaient le choix entre 1 ou 2 pour I_1.

La distribution angulaire des rayons γ de 805 keV émis par des noyaux de ^{58}Co alignés a été déterminée à Oxford [15]. Six distributions différentes étaient théoriquement possibles (*fig.* 6). Une inspection qualitative des résultats permettait tout de suite d'exclure les distributions E et F. Une analyse plus

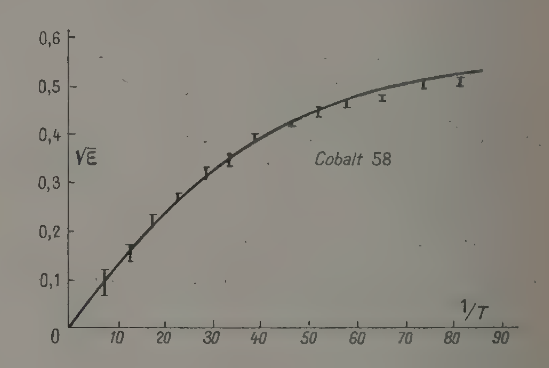


Fig. 7. — Variation d'anisotropie avec la température montants les points expérimentaux et la courbe théorique pour $I_\beta = 2$, $I_1 = 2$, $i_\beta = 1$ à $\frac{1}{T} = 52$.

détaillée (*fig.* 7) montrait que le meilleur accord fut obtenu par la courbe C de la figure 6. Ainsi on arrive aux valeurs suivantes :

$$I_\beta = 2, \qquad I_1 = 2, \qquad i_\beta = 1,$$

et pour le moment magnétique

$$\mu = 3{,}5 \pm 0{,}5.$$

D'autre part, une détermination de la plaine de polarisation [14] a permis de conclure que la transition γ est un quadripôle électrique.

La méthode proposée par Gorter et Rose a été utilisée pour polariser les noyaux de ^{54}Mn [16]. La désintégration de ce noyau produit — par capture K — le noyau ^{54}Cr excité, qui descend par émission d'un seul rayon γ de 0,845 MeV à son état fondamental. Des champs variant de 100 gauss jusqu'à 1000 gauss ont été appliqués pour polariser les moments magnétiques électroniques. L'anisotropie de la radiation γ donnait des valeurs de ε jusqu'à 0,82, indiquant une polarisation nucléaire d'approximativement 90 pour 100.

L'analyse de la distribution angulaire des rayons γ montre qu'il s'agit d'une transition quadripôlaire. La détermination de la plaine de polarisation [17] prouve que c'est un quadripôle électrique. On sait

que l'état fondamental de ^{54}Cr doit avoir le spin zéro et une parité paire. Ainsi on arrive à attribuer à l'état excité le spin 2 et également une parité paire.

Le nombre de données obtenues avec les méthodes d'orientation nucléaire à basse température est encore très petit. Les méthodes actuellement à notre disposition nécessitent une étude détaillée du matériel cristallin utilisé pour chaque élément. En plus, chaque expérience présente une tâche considérable, nécessitant la collaboration d'au moins deux spécialistes de basse température et deux physiciens nucléaires.

On peut cependant commencer à se faire une idée un peu plus précise sur les applications possibles. Il est en principe possible d'obtenir par l'observation de la distribution angulaire à plusieurs températures et par une détermination de la plaine de polarisation des rayons γ un nombre considérable de données (le spin et moment magnétique des noyaux orientés, le changement de moment angulaire et le changement de parité associé avec l'émission d'un rayon γ et le caractère de la transition β). Mais pour obtenir toutes ces données il faudra aller à la limite des possibilités de précision. D'autre part, on peut se heurter à de grandes difficultés d'interprétation (*voir* l'exposé de M. Grace).

Ainsi, il nous semble pour le moment qu'il sera plus prudent d'essayer de coordonner les méthodes d'orientation nucléaire avec d'autres méthodes expérimentales, ou de se limiter à des cas pour lesquels les autres méthodes deviennent impossibles ou trop difficiles.

Nous avons déjà mentionné que les cas d'un noyau isomère émettant un seul rayon γ est le plus favorable pour la méthode de l'orientation nucléaire. La détermination du caractère multipôlaire par l'étude de la conversion interne est dans ce cas la seule alternative. Elle est très difficile pour des rayons γ de haute énergie.

Dans le cas d'une désintégration β ou d'une capture K suivie d'un seul rayon γ, il serait désirable de déterminer le moment magnétique du noyau orienté avec une autre méthode et de déterminer avec la méthode d'orientation nucléaire seulement le caractère multipôlaire du rayon γ et i_β.

Dans certains cas l'interprétation des résultats pourrait être considérablement simplifiée par une application de la méthode de résonance nucléaire à des noyaux orientés. Ainsi l'anisotropie de la distribution angulaire des rayons γ servira simplement comme détecteur permettant de déterminer la fréquence de résonance. Une telle expérience peut fournir une valeur pour $\frac{\mu}{I}$ qui serait indépendante de la forme exacte de la distribution angulaire.

Nous avons déjà dit que la question d'expériences sur l'interaction de faisceaux de nucléons avec des noyaux polarisés ne peut pas être discutée dans le cadre de notre exposé.

Nous avons également dû renoncer à discuter la polarisation circulaire [18] des rayons γ et la polarisation des particules β [19] émis par des noyaux polarisés. Ces deux phénomènes n'ont d'ailleurs pas encore été observés.

Intervention de M. de Groot. — Si vraiment le premier niveau de ^{60}Co a le spin 4, la transition β se fait par mélange d'interactions Fermi et Gamow-Teller. Il intervient donc un nouveau paramètre (qui décrit la proportion relative des contributions Fermi et Teller) dans les calculs. On devrait donc disposer d'une *série* de courbes théoriques de la distribution angulaire pour différentes valeurs de ce paramètre (*voir* Cox, de Groot et Hartobh, *Physica*, 1953, **19**, 1119 et 1123).

Réponse de M. Halban. — Oui, la méthode pourrait distinguer entre transitions pures et transitions mélangées. C'est précisément une raison pour laquelle on devrait se limiter à déterminer aussi peu de données possibles pour chaque orientation nucléaire et augmenter la précision.

Intervention de M. Abragam. — A l'occasion de la remarque de M. Halban sur la détection de la résonance nucléaire de noyaux orientés par le changement de l'anisotropie du rayonnement γ émis, je signale qu'une première expérience de ce genre a été tentée par Temmer à la Carnegie Institution et n'a pas donné de résultats.

Intervention de M. Heer. — Je crois que la méthode de mesure du moment magnétique avec la résonance magnétique ira mieux si l'on fait l'alignement des noyaux avec la méthode Overhauser. On peut alors employer des températures raisonnables et l'on n'aura pas de difficultés avec le chauffage par la haute fréquence.

Réponse de M. Halban. — En effet, l'effet Overhauser offre une méthode plus directe.

Intervention de M. Haynes. — En utilisant les compteurs Geiger est-ce que vous avez eu des difficultés avec la diffraction des rayons γ par l'appareil ?

Réponse de M. Halban. — 1° Nous nous sommes servis de compteurs à scintillations pour le ^{58}Co et ^{54}Mn.

2° Les corrections pour la diffusion des noyaux sont de 5 à 10 pour 100.

Intervention de M. Rosenblum. — L'appareil pour produire les champs magnétiques est-il analogue à celui de M. Beling Tsaï ?

M. Halban. — C'est l'appareil de Tsaï.

BIBLIOGRAPHIE.

Une bibliographie plus complète se trouve dans le Résumé : Grace and Halban, (*Progress in Nuclear Physics*, 1953, vol. 3, Pergamon Press *Oriented Nuclear Systems by Blin-Stoyle* London).

Ainsi que dans β *and* γ *Ray Spectroscopy*, Editor K. Siegbahn. North Holland Publishing Co (*voir* les contributions par de Groot et Tolhoek, ainsi que celle par Blin-Stoyle, Grace et Halban).

Voir aussi : O. J. Poppema, *Nuclear Orientation in Solids* (*Thesis*, Groningen, 1954).

Pour la théorie des méthodes d'orientation nucléaire, *voir* aussi : Abragam et Pryce, *Proc. Roy. Soc.*, 1951, **205**, 135.

[1] Gorter C. J. — *Physik Z.*, 1934, **35**, 923.

[2] Kurti N. et Simon F. E. — *Proc. Roy. Soc.*, 1935, **149**, 152.
Simon F. E. — *C. R. Cong. Sur le Magnétisme*, Strasbourg, 1939, **3**, 1.

[3] Halban H. — *Nature*, 1937, **140**, 425.

[4] Gorter C. J. — *Physica*, 1948, **14**, 504.

[5] Rose M. E. — *Phys. Rev.*, 1949, **75**, 213.

[6] Ambler E., Grace M. A., Halban H., Kurti N., Durand H., Johnson C. et Lemmer H. R. — *Phil. Mag.*, 1953, **44**, 216.
Bleaney B., Daniels J. M., Grace M. A., Halban H., Kurti N., Robinson F. N. et Simon F. E. — *Proc. Roy. Soc.*, 1954, **221**, 170.

[7] Spiers J. A. — *Nature*, 1948, **161**, 807; Directional Effects in Radioactivity, N. R. C. C. publication.

[8] Bleaney B. — *Proc. Phys. Soc.*, A, 1951, **64**, 315.
Bleaney B. — *Phil. Mag.*, 1951, **42**, 441.

[9] Pound R. V. — *Phys. Rev.*, 1949, **76**, 1410.

[10] Steenberg N. R. — *Phys. Rev.*, 1951, **84**, 1051; *Proc. Phys. Soc.*, 1952, A **65**, 791; *Proc. Phys. Soc.*, A, 1953, **66**, 391; *Proc. Phys. Soc.*, A, 1953, **66**, 399; *Can. J. Physics*, 1953, **31**, 204; *Thesis*, Oxford, 1953.

[11] Tolhoek H. A. et Cox J. A. M. — *Physica*, 1952, **18**, 357; *Physica*, 1952, **18**, 1257; *Physica*, 1952, **18**, 1262; *Physica*, 1952, **18**, 359; *Physica*, 1953, **19**, 101.

[12] Daniels J. M., Grace M. A. et Robinson F. N. H. — *Nature*, 1951, **168**, 780.

[13] Gorter C. J., Tolhoek H. A., Poppema O. J., Steenland M. J. et Beun J. A. — *Physica*, 1952, **18**, 135.
Poppema O. J., Beun J. A., Steenland M. J. et Gorter C. J. — *Physica*, 1952, **18**, 1235.
Poppema O. J. — *Thesis*, Groningen, 1954.

[14] Bishop G. R., Daniels J. M., Goldschmidt G., Halban H., Hurti N. et Robinson F. N. H. — *Phys. Rev.*, 1952, **88**, 1432.

[15] Daniels J. M., Grace M. A., Halban H., Kurti N. et Robinson F. N. H. — *Phil. Mag.*, 1952, **43**, 1297.

[16] Travaux inédits.

[17] Bishop, Grace, Johnson, Kurtu et Lemmer. — Résultat pas encore publié.

[18] Bleaney B., Daniels J. M., Grace M. A., Halban H., Kurti N. et Robinson F. N. H. — *Phys. Rev.*, 1952, **85**, 688.
Steenberg N. R. — *Phys. Rev.*, 1951, **84**, 1051; *Proc. Phys. Soc.*, A, 1952, **65**, 791; *Proc. Phys. Soc.*, A, 1953, **66**, 391; *Proc. Phys. Soc.*, A, 1953, **66**, 399; *Can. J. Phys.*, 1953, **31**, 204; *Thesis*, Oxford, 1953.
Tolhoek H. A. et Cox J. A. M. — *Physica*, 1952, **18**, 357; *Physica*, 1952, **18**, 1257; *Physica*, 1952, **18**, 1262; *Physica*, 1952, **18**, 359; *Physica*, 1953, **19**, 101.

[19] Tolhoek H. A. et Groot S. R. de. — *Physica*, 1951, **17**, 81.

LA DISTRIBUTION ANGULAIRE DES RAYONNEMENTS ÉMIS PAR DES NOYAUX ORIENTÉS : L'INFLUENCE DE LA PRÉCESSION DES SPINS NUCLÉAIRES DANS LES ÉTATS INTERMÉDIAIRES, EN PARTICULIER APRÈS UNE CAPTURE K

Par H. A. TOLHOEK, Chr. D. HARTOGH et S. R. de GROOT,
Institut de Physique Théorique, Leyde (Pays-Bas).

Summary. — Oriented nuclei may emit γ radiation with anisotropic angular distribution, which is mostly preceded by a β emission or K-capture. The influence of the precession of the nuclear spin in the intermediate state is studied. After K-capture a strong coupling between the nuclear spin and the remaining K-electron exists, but its influence on the angular distribution is small, due to the short life time of the atomic intermediate state.

1. Introduction. — Du point de vue théorique les sujets :

a. Distributions angulaires des rayonnements émis par des noyaux orientés à l'aide de champs cristallins ou de champs magnétiques extérieurs et de basses températures (de l'ordre de 0,01° K) [1], [2];

b. Corrélations angulaires des rayonnements successifs des noyaux [1], [2] présentent des problèmes de calcul très analogues. Les méthodes dues à Racah [3], [4] ont permis de faire les calculs d'une façon générale et élégante.

Les circonstances expérimentales des deux champs de recherche sont assez différentes parce que l'orientation des noyaux nécessite l'emploi des méthodes d'un laboratoire cryogène pour atteindre les basses températures, tandis que les corrélations angulaires nécessitent l'emploi de compteurs à coïncidences. Les méthodes actuellement utilisées pour l'orientation des noyaux nécessitent l'emploi de cristaux de types très spéciaux. Pour les mesures des corrélations angulaires, les noyaux peuvent faire partie d'un composé chimique quelconque.

Le sujet de ce Mémoire est l'influence de la précession des spins nucléaires sur la distribution angulaire des rayonnements des noyaux orientés. Cette influence est analogue à celle de la précession intervenant dans les corrélations angulaires. Il y a pourtant deux différences :

1° L'état intermédiaire pour une corrélation angulaire β-γ ou γ-γ est atteint après une émission β ou γ, tandis que l'état intermédiaire pour les noyaux orientés est atteint après une émission β ou une capture K. L'état physique du cortège électronique après une capture K est différent de celui après l'émission β ou γ (parce qu'un trou dans la couche K est formé). On ne mesure pas de corrélations K-γ : il y a seulement émission d'un neutrino pour une capture K. Halban [5] a suggéré que l'effet de précession après une capture K pourrait être grand.

2° Pour les noyaux orientés, il n'y a qu'un choix très limité de cristaux dans lesquels les noyaux peuvent être introduits; ce choix n'est pas limité pour les corrélations angulaires. Il est donc utile de comparer les effets de précession des spins nucléaires pour les noyaux orientés avec les études du même genre faites pour les corrélations angulaires [6], [7].

2. Les facteurs d'atténuation provenant de la précession des spins nucléaires dans les états intermédiaires. — Nous considérons le cas où l'on a une cascade de rayonnements 1, 2, 3, ..., n. Ces rayonnements peuvent accompagner des transitions du noyau ou du cortège électronique de nature quelconque. Nous indiquerons les grandeurs attachées aux niveaux différents par des indices 0, 1, 2, ..., n (*fig.* 1); en particulier τ sera la vie moyenne d'un noyau, j le spin nucléaire et $\mathbf{k}$ la quantité de mouvement du rayonnement i ($i = 1, \ldots, n$).

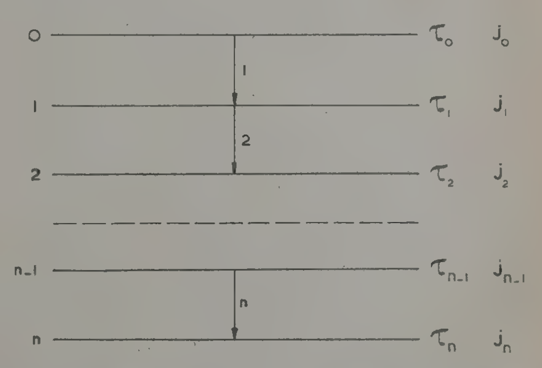


Fig. 1. — États et transitions successives d'un système. L'état l a une vie moyenne τ_l et un moment angulaire j_l ($l = 0, 1, \ldots, n$).

Nous comparons :

a. la distribution angulaire du rayonnement n dans le cas où l'orientation des noyaux dans l'état 0 est donnée par les coefficients d'orientation $(f_k)_0$ [2] (avec l'axe η de symétrie de rotation);

b. la corrélation angulaire des rayonnements l et n (sans orientation pour l'état 0 des noyaux).

Nous pouvons alors écrire pour la distri-

bution angulaire ou de la corrélation angulaire [8], [9], [10], [11] :

$$W(\theta) = \Sigma_k A_k P_k(\cos\theta), \qquad (2.1)$$

avec pour :

a. θ angle entre $\boldsymbol{\eta}$ et $\mathbf{k}_n$; $A_k = c_k (f_k)_0$; c_k fonction des $j_0, \ldots, j_n$ et des caractères multipôlaires des rayonnements P_k est le polynome de Legendre;

b. θ angle entre $\mathbf{k}_1$ et $\mathbf{k}_n$; A_k est fonction des $j_0, \ldots, j_n$ et des moments angulaires des rayonnements.

Si l'on admet qu'il y a précession des spins nucléaires, la formule (1) doit être changée. Elle comportera des facteurs d'atténuation $Q_k^{(l)}$ de la façon suivante (*cf.* [12], [13], *voir* aussi les Appendices) :

$$W(\theta) = \Sigma_k A_k Q_k^{(1)} \ldots Q_k^{(n-1)} P_k(\cos\theta), \qquad (2.2)$$

Cette formule est valable sous certaines conditions (*voir* remarques A et B à la fin de ce paragraphe). Pour le cas où le couplage « hyperfin » du noyau dans l'état l est donné par l'expression

$$H_{\text{int}} = - a \mathbf{j}_l . \mathbf{J}_l \qquad (2.3)$$

(a, constante de structure hyperfine; $\mathbf{J}_l$, moment angulaire du cortège électronique; $\mathbf{F}_l = \mathbf{j}_l + \mathbf{J}_l$), les facteurs d'atténuation sont donnés par (l'indice l a été omis)

$$Q_k = \frac{1}{2J+1} \Sigma_{FF'} (2F+1) \times (2F'+1) \frac{W^2(jjFF'; kJ)}{1 + (\varepsilon_{FF'}\tau)^2}, \qquad (2.4)$$

où W est un coefficient de Racah et où

$$\varepsilon_{FF'} = \frac{1}{2} a [F(F+1) - F'(F'+1)]. \qquad (2.5)$$

Il faut remarquer :

A. Les facteurs d'atténuations $Q_k^{(l)}$ ne dépendent que des grandeurs caractéristiques de l'état intermédiaire (j_l, J_l, $\varepsilon_{FF'}^{(l)}$, τ_l), mais ne dépendent pas des rayonnements qui suivent.

B. Partant de la formule générale, dérivée dans l'Appendice I [*voir* (A.23)], on peut calculer l'influence de la précession des spins sur la distribution angulaire ou sur la corrélation angulaire d'un certain nombre de rayonnements. Cependant, on n'obtient une formule de la forme simple (2.2) que dans les cas *a* ou *b* (mentionnés ci-dessus), si, en même temps, les transitions (de l'atome) sont du type suivant :

1. Une transition du noyau sans changement du cortège électronique (désintégration β; rayonnement γ; *voir* § 4);

2. Une transition du cortège électronique sans changement du noyau (rayonnement X, effet Auger);

3. Une capture K, provoquée par l'interaction de Fermi (*voir* § 3).

Dans le cas 1, 2 et 3 le couplage des spins nucléaires avec l'extérieur est isotrope; c'est une condition nécessaire pour obtenir la forme (2.2).

3. Précession des spins nucléaires après une capture K. — L'état intermédiaire formé après une capture K possède un trou dans la couche K; ce qui donne un couplage très fort entre le spin nucléaire et le spin de l'électron qui reste dans la couche K. Cependant, la vie moyenne d'un trou dans la couche K est très courte. Ce caractère est fort différent de celui des états intermédiaires formés après émission β ou γ où le cortège électronique ne sera excité que dans les couches extérieures.

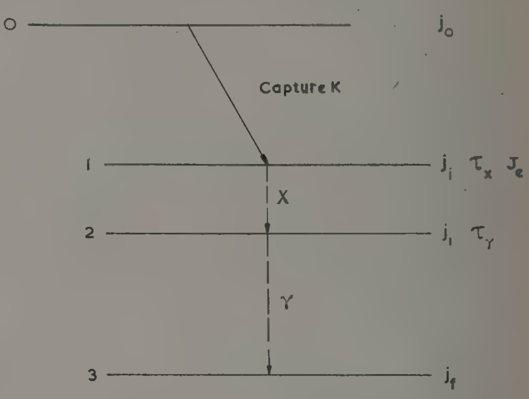


Fig. 2. — Capture K suivie d'un photon X et d'un photon γ.

La situation pour la capture K est représentée dans la figure 2. Les noyaux sont orientés dans l'état 0. Après la capture K, on n'a qu'un seul électron K avec le spin $J_e = \frac{1}{2}$ couplé au spin nucléaire j_l. Puisque la vie moyenne pour le remplissage du trou (par rayonnement X ou par effet Auger) est bien plus courte que les vies moyennes des transitions γ, on peut admettre l'ordre indiqué dans la figure.

Faisons maintenant les hypothèses suivantes :

a. La capture de K se passe par l'interaction de Fermi (élément de matrice nucléaire $\int 1$). Ceci veut dire que la distribution du spin de l'électron $\mathbf{J}_e$ aura la symétrie sphérique.

b. L'orientation des spins nucléaires n'est pas changée pendant la transition qui remplit le trou dans la couche K.

Avec ces hypothèses l'influence de la précession des spins dans l'état 1 peut être exprimée par un facteur d'atténuation (2.4), pour lequel nous pouvons donner les valeurs de $\varepsilon_{FF'}$ et τ.

L'expression de $\varepsilon_{FF'}$ est donnée par (2.5) où la constante a possède la valeur [14]

$$a = \frac{8}{3} \frac{2\pi\hbar c R_\infty \alpha^2 Z_{\text{eff}}^3}{n^3 \left(\frac{M}{m}\right)} g_I. \qquad (3.1)$$

$R_\infty = \frac{me^4}{4\pi\hbar^3 c}$, constante de Rydberg; g_j, facteur g pour le noyau; le moment magnétique nucléaire est $\boldsymbol{\mu} = \mathbf{g}_j \left(\frac{e\hbar}{2Mc}\right) \mathbf{j}$; n, nombre quantique principal; $n = 1$ pour un électron K; $\frac{M}{m}$, rapport des masses du proton et de l'électron. La formule (3.1) a été calculée avec des fonctions d'onde hydrogénoïdes, où Z est la charge effective du noyau.

La probabilité de transition totale pour toutes les transitions avec émission de rayons X, qui peuvent remplir le trou dans la couche K, est donnée par [15]

$$\lambda_X = \frac{256 \times 32 . \pi^3}{3} \frac{e^2 a_B R_\infty^3}{\hbar} Z_{\text{eff}}^4 \sum_{n=2}^{n_{\max}} \frac{n(n-1)^{2n-2}}{(n+1)^{2n+2}}, \quad (3.2)$$

avec $a_B = \frac{\hbar^2}{me^2}$; $n_{\max}$, le nombre quantique maximum de la couche qui possède des électron qui peuvent faire une transition vers la couche K.

En dehors de l'émission des rayons X le trou de la couche K peut être rempli par effet Auger. Si l'on appelle $f = \frac{\lambda_X}{\lambda_A}$ le rapport de fluorescence [16] : rapport des probabilités par émission X et par effet Auger, on a pour les probabilités de transition par effet Auger λ_A et pour

$$\lambda_{\text{tot}} = \lambda_X + \lambda_A = \lambda_X \left(1 + \frac{1}{f}\right) = \frac{1}{\tau} \quad (3.3)$$

(τ, vie moyenne du trou dans la couche K).

Les formules (2.4), (2.5), (3.1), (3.2) et (3.3) permettent le calcul numérique des facteurs d'atténuation pour la précession des spins nucléaires après une capture K. Nous donnerons des exemples pour des valeurs de $Z = 27$ et $Z = 60$ correspondant au cas du Co $\left[{}^{58}\text{Co a été orienté}; \frac{P_K}{P_+} = 5{,}9 \ (\textit{fig. } 3) \right]$ et des lanthanides, des nuclides que l'on a pu orienter. Dans le cas où il y a seulement capture K, on trouve

$Z = 27, \quad j = 2$:

$$\left. \begin{aligned} Q_2 &= 1 - g_j^2 \times 1{,}233.10^{-4}, \\ Q_4 &= 1 - g_j^2 \times 4{,}111.10^{-4}; \end{aligned} \right\} \quad (3.4)$$

$Z = 60, \quad j = 2$:

$$\left. \begin{aligned} Q_2 &= 1 - g_j^2 \times 0{,}845.10^{-4}, \\ Q_4 &= 1 - g_j^2 \times 2{,}816.10^{-4}. \end{aligned} \right\} \quad (3.5)$$

Ceci montre que l'effet est négligeable pour des valeurs de g_j, qui se présentent dans l'expérience. On peut montrer en outre que les valeurs de Q_2 et Q_4 dépendent très peu de la valeur de j.

L'influence de la précession des spins est encore plus petite pour $Z = 60$ que pour $Z = 27$. Ceci suit d'une façon générale des formules (3.1) et (3.2); les Q_k ne dépendent que du produit $\varepsilon_{FF'} \tau$: en effet, les valeurs de $\varepsilon_{FF'}$ augmentent moins rapidement avec Z que les τ ne diminuent avec Z.

Le calcul est considérablement plus compliqué si la capture K se passe par l'interaction Gamow-Teller au lieu de l'interaction de Fermi. Alors il n'existe plus de symétrie sphérique pour l'orientation de $\mathbf{J}_c$, à cause de l'orientation des états initiaux des noyaux. Cependant l'effet reste du même ordre de grandeur. Par conséquent on peut négliger l'effet des précessions des spins dans tous les cas.

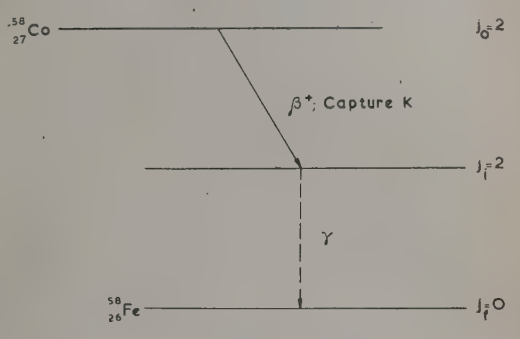


Fig. 3. — Désintégration du ^{58}Co.

Après le remplissage des couches intérieures on se trouve dans une situation un peu analogue à celle qui existe après émission β ou émission γ.

4. **Précession des spins nucléaires après émission β ou γ.** — Comme indiqué dans l'introduction, les calculs des précessions des spins après émission β ou γ sont tout à fait analogues à ceux pour les corrélations angulaires. On a trouvé expérimentalement [6] que les corrélations angulaires sont influencées par l'état chimique de la matière contenant les noyaux. Il est donc probable que des effets analogues existent pour les distributions angulaires des noyaux orientés. Dans ce cas on ne peut pas facilement choisir l'état chimique de la matière contenant les noyaux (*voir* sous 2°, § 1). La différence avec la situation du paragraphe 3 est que le couplage $\varepsilon_{FF'}$ est beaucoup plus faible après émission β ou γ (couplage avec électrons extérieurs) qu'après capture K (couplage avec électron K); mais cette différence d'intensité est plus que compensée par le fait que des vies moyennes beaucoup plus longues peuvent exister pour l'émission γ (de l'ordre de 10^{-11} s) que pour l'émission X (de l'ordre de 10^{-15}s).

Bien que l'on dispose des formules (2.4) pour les Q_K, on a la difficulté que l'on ne connaît pas des valeurs exactes pour les $\varepsilon_{FF'}$ [6], [14] : les effets qui se produiront dans les couches extérieures après une émission β ou γ sont en effet compliqués par le recul des noyaux.

Prenons l'exemple du ^{60}Co. Le recul maximum après l'émission β^- est 3,7 eV, après l'émission γ_1 il est 12,2 eV.

Ceci doit être comparé avec l'énergie de cohésion

ionique dans le cristal qui est de l'ordre de 5 eV. Alors l'ion de ^{60}Ni pourrait se trouver à une place anormale dans le réseau cristallin. Il semble difficile dans ces conditions de donner une valeur précise de la constante a de structure hyperfine.

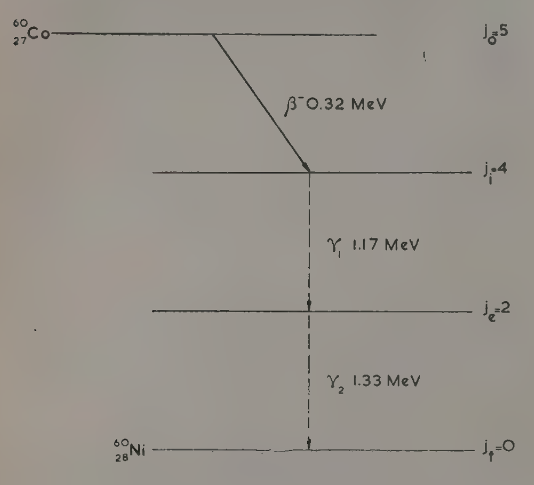


Fig. 4. — Désintégration du ^{60}Co.

Pour avoir au moins une indication expérimentale de l'influence de la précession des spins nucléaires lors de la distribution angulaire des γ des noyaux ^{60}Co orientés, il y a les possibilités suivantes :

a. Mesure de la corrélation angulaire entre γ_1 et γ_2 à une température normale (dans le cristal utilisé pour les mesures avec des noyaux orientés); une précession considérable dans l'état intermédiaire 2^+ serait repérée par une déviation par rapport à la formule théorique sans précession.

b. Mesures indépendantes des distributions angulaires de γ_1 et γ_2 des noyaux orientés. Une différence indiquerait une précession considérable dans le niveau 2^+ [1].

c. Le rapport $\frac{A_4}{A_2}$ dans la formule (2.1) pour la distribution angulaire peut être déduit du rapport $\frac{f_4}{f_2}$ des coefficients d'orientation des noyaux. Ce rapport peut être calculé si l'on connaît le mécanisme d'orientation et la valeur de f_2 (en mesurant A_2). Le rapport des coefficients de P_4 et P_2 pourrait être changé par une précession dans les états intermédiaires, parce que les Q_2 et Q_4 (2.2) seront en général différents.

(1) C. J. Gorter et ses collaborateurs du Laboratoire Kamerlingh-Onnes à Leyde ont mesuré les distributions angulaires de γ_1 et γ_2 des noyaux ^{60}Co séparément (*fig.* 4). De ces mesures, il résulte que la déviation entre ces distributions angulaires n'est pas supérieure à 3 pour 100 (c'est-à-dire : $0{,}97 \leq Q_2 \leq 1$ pour le niveau 2^+).

Appendice I [2]. — *Rayonnements successifs : formules générales pour les probabilités de transition avec précession des spins dans les états intermédiaires.* — Considérons un nombre d'états (d'un système noyau + cortège électronique) couplés à l'état précédent et à l'état suivant par des rayonnements successifs. Prenons comme exemple le cas de quatre niveaux (correspondant au cas du paragraphe 3); la généralisation à un nombre quelconque de niveaux est évidente. A, B, ... indiqueront les états successifs que parcourent le système atomique + rayonnements.

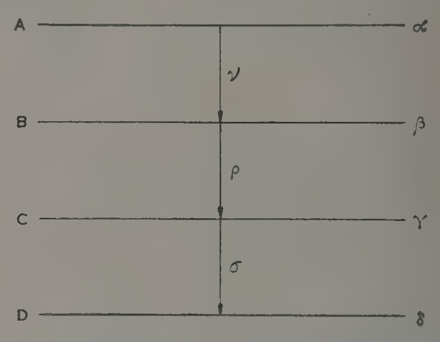


Fig. 5. — Trois transitions successives. Quatre niveaux A, B, C, D. Les paramètres α, β, γ et δ caractérisent les niveaux, et ν, ρ et σ les rayonnements.

Soient α, β, γ, δ les nombres quantiques des moments angulaires caractérisant noyau et cortège électronique dans les états A, B, C, D (ces niveaux ont des sous-niveaux magnétiques); soient ν, ρ, σ les nombres quantiques pour les rayonnements (moments angulaires et énergies des rayonnements). Soient ε_α, ε_β, ε_γ, ε_δ les énergies des niveaux A, B, C, D; soient ω_ν, ω_ρ, ω_σ les énergies des rayonnements. La représentation déterminée par α, β, γ, δ, ν, ρ, σ a pour états fondamentaux des états qui sont stationnaires en l'absence des parties H_K, H_X et H de l'hamiltonien, qui donnent lieu aux radiations ν, ρ et σ.

Les équations de mouvement du système pour l'hamiltonien total peuvent s'écrire

$$\left.\begin{aligned} i\hbar\left(\frac{d}{dt}\right)\langle \alpha | A\rangle &= \varepsilon_\alpha\langle \alpha | A\rangle + \Sigma_{\beta\nu}\langle \alpha | H_K | \beta\nu\rangle\langle \beta\nu | B\rangle, \\ i\hbar\left(\frac{d}{dt}\right)\langle \beta\nu | B\rangle &= \varepsilon_{\beta\nu}\langle \beta\nu | B\rangle + \Sigma_\alpha\langle \beta\nu | H_K | \alpha\rangle\langle \alpha | A\rangle \\ &\quad + \Sigma_{\gamma\rho}\langle \beta | H_X | \gamma\rho\rangle\langle \gamma\rho | C\rangle, \end{aligned}\right\} \quad (A.1)$$

(2) Ces appendices donnent un bref exposé des méthodes de Trahi et Gœrtzel [17] et de Biedenharn et Rose [13] appliquées à notre problème. Nous voulons montrer surtout que ces méthodes (en faisant certaines hypothèses sur l'ordre des rayonnements et sur l'isotropie de l'espace) sont valables pour un nombre quelconque de rayonnements quelle qu'en soit la nature.

et

$$\left.\begin{aligned} & i\hbar\left(\frac{d}{dt}\right)\langle\gamma\nu\rho\,|\,C\rangle \\ &\quad = \varepsilon_{\gamma\nu\rho}\langle\gamma\nu\rho\,|\,C\rangle + \Sigma_\beta\langle\gamma\rho\,|\,H_X\,|\,\beta\rangle\langle\beta\nu\rangle\,|\,B\rangle \\ &\qquad + \Sigma_{\delta\sigma}\langle\gamma\,|\,H\,|\,\delta\sigma\rangle\langle\delta\nu\rho\sigma\,|\,D\rangle, \\ & i\hbar\left(\frac{d}{di}\right)\langle\delta\nu\rho\sigma\,|\,D\rangle \\ &\quad = \varepsilon_{\delta\nu\rho\sigma}\langle\delta\nu\rho\sigma\,|\,D\rangle + \Sigma_\gamma\langle\delta\sigma\,|\,H\,|\,\gamma\rangle\langle\gamma\nu\rho\,|\,C\rangle; \end{aligned}\right\} \quad (A.2)$$

où

$$\varepsilon_{\beta\nu} = \varepsilon_\beta + \omega_\nu; \qquad \varepsilon_{\gamma\nu\rho} = \varepsilon_\gamma + \omega_\nu + \omega_\rho;$$
$$\varepsilon_{\delta\nu\rho\sigma} = \varepsilon_\delta + \omega_\nu + \omega_\rho + \omega_\sigma$$

et où $|\,A>$, $|\,B>$, $|\,C>$, $|\,D>$ indiquent les états du système atomique plus rayonnement.

Par application de la transformation de Laplace

$$A_\alpha = \int_0^\infty \langle\alpha\,|\,A\rangle \exp(-st)\,dt \qquad (A.3)$$

($B_{\beta\nu}$, $C_{\gamma\nu\rho}$ et $D_{\delta\nu\rho\sigma}$ sont définies d'une façon analogue) on obtient pour les équations de mouvements

$$w_1(\alpha)A_\alpha = i\hbar c_\alpha + \Sigma_{\beta\nu}\langle\alpha\,|\,H_K\,|\,\beta\nu\rangle B_{\beta\nu}, \qquad (A.4)$$

$$w_2(\beta\nu)B_{\beta\nu} = \Sigma_\alpha\langle\beta\nu\,|\,H_K\,|\,\alpha\rangle A_\alpha + \Sigma_{\gamma\rho}\langle\beta\,|\,H_X\,|\,\gamma\rho\rangle C_{\gamma\nu\rho}, \qquad (A.5)$$

$$w_3(\gamma\nu\rho)C_{\gamma\nu\rho} = \Sigma_\beta\langle\gamma\rho\,|\,H_X\,|\,\beta\rangle B_{\beta\nu} + \Sigma_{\delta\sigma}\langle\gamma\,|\,H\,|\,\delta\sigma\rangle D_{\delta\nu\rho\sigma}, \qquad (A.6)$$

$$w_4(\delta\nu\rho\sigma)D_{\delta\nu\rho\sigma} = \Sigma_\gamma\langle\delta\sigma\,|\,H\,|\,\gamma\rangle C_{\gamma\nu\rho}, \qquad (A.7)$$

avec

$$\left.\begin{aligned} & w_1(\alpha) = i\hbar s - \varepsilon_\alpha; \qquad w_2(\beta\nu) = i\hbar s - \varepsilon_{\beta\nu}; \\ & w_3(\gamma\nu\rho) = i\hbar s - \varepsilon_{\gamma\nu\rho}; \qquad w_4(\delta\nu\rho\sigma) = i\hbar s - \varepsilon_{\delta\nu\rho\sigma}. \end{aligned}\right\} \quad (A.8)$$

Pour obtenir (A.4) à (A.7) il faut introduire les conditions initiales

$$\left.\begin{aligned} & \langle\alpha\,|\,A\rangle = c_\alpha, \qquad \langle\beta\nu\,|\,B\rangle = 0, \qquad \langle\gamma\nu\rho\,|\,C\rangle = 0, \\ & \qquad \langle\delta\nu\rho\sigma\,|\,D\rangle = 0 \qquad \text{pour} \quad t = 0. \end{aligned}\right\} \quad (A.9)$$

On peut obtenir la solution du système d'équations (A.4) à (A.7) de la façon suivante : substitution de (A.7) dans (A.6) donne

$$\begin{aligned} & w_3(\gamma\nu\rho)C_{\gamma\nu\rho} \\ &\quad = \Sigma_\beta\langle\gamma\rho\,|\,H_X\,|\,\beta\rangle B_{\beta\nu} \\ &\qquad + \Sigma_{\gamma'}\Sigma_{\delta\sigma}\frac{\langle\gamma\,|\,H\,|\,\delta\sigma\rangle\langle\delta\sigma\,|\,H\,|\,\gamma'\rangle}{w_4(\delta\nu\rho\sigma)}C_{\gamma'\nu\rho}. \end{aligned} \qquad (A.10)$$

Ceci se réduit à

$$[w_3(\gamma\nu\rho) + i\gamma_C]C_{\gamma\nu\rho} = \Sigma_\beta\langle\gamma\rho\,|\,H_X\,|\,\beta\rangle B_{\beta\nu} \qquad (A.11)$$

à l'aide du lemme (*voir* Appendice II)

$$i\Sigma_{\delta\sigma}\frac{\langle\gamma\,|\,H\,|\,\delta\sigma\rangle\langle\delta\sigma\,|\,H\,|\,\gamma'\rangle}{i\hbar s - (\varepsilon_\delta + \omega_\nu + \omega_\rho + \omega_\sigma)} = \gamma_C\delta_{\gamma\gamma'}, \qquad (A.12)$$

$$\left.\begin{aligned} & \gamma_C \text{ est réel et indépendant de } s \\ & \text{(en bonne approximation).} \end{aligned}\right\} \quad (A.13)$$

On peut résoudre ensuite $C_{\gamma\nu\rho}$ de (A.11), substituer sa valeur dans (A.5), résoudre la valeur de $B_{\beta\nu}$, substituer le résultat dans (A.4) et résoudre A_α. Les opérations sont possibles grâce aux lemmes suivants analogues à (A.12) (*voir* Appendice II).

$$i\Sigma_{\gamma\rho}\frac{\langle\beta\,|\,H_X\,|\,\gamma\rho\rangle\langle\gamma\rho\,|\,H_X\,|\,\beta'\rangle}{i\hbar s - (\varepsilon_\gamma + \omega_\nu + \omega_\rho) + i\gamma_C} = \gamma_X\delta_{\beta\beta'}. \qquad (A.14)$$

puis

$$i\Sigma_{\beta\nu}\frac{\langle\alpha\,|\,H_K\,|\,\beta\nu\rangle\langle\beta\nu\,|\,H_K\,|\,\alpha'\rangle}{i\hbar s - (\varepsilon_\beta + \omega_\nu) + i\gamma_X} = \gamma_K\delta_{\alpha\alpha'}, \qquad (A.15)$$

$$\left.\begin{aligned} & \gamma_X \text{ et } \gamma_K \text{ sont réels et indépendants de } s \\ & \text{(en bonne approximation).} \end{aligned}\right\} \quad (A.16)$$

Les équations que l'on obtient de cette façon sont

$$[w_2(\beta\nu) + i\gamma_X]B_{\beta\nu} = \Sigma_\alpha\langle\beta\nu\,|\,H_K\,|\,\alpha\rangle A_\alpha, \qquad (A.17)$$

$$[w_1(\alpha) + i\gamma_K]A_\alpha = i\hbar c_\alpha. \qquad (A.18)$$

On détermine la valeur de $D_{\delta\nu\rho\sigma}$ des équations (A.7), (A.11), (A.17) et (A.18) à

$$\begin{aligned} & D_{\delta\nu\rho\sigma}(s) \\ &\quad = \frac{1}{w_4(\delta\nu\rho\sigma)}\Sigma_{\gamma\beta\alpha} \\ &\qquad \times \frac{\langle\delta\sigma\,|\,H\,|\,\gamma\rangle\langle\gamma\rho\,|\,H_X\,|\,\beta\rangle\langle\beta\nu\,|\,H_K\,|\,\alpha\rangle i\hbar c_\alpha}{[w_3(\gamma\nu\rho) + i\gamma_C][w_2(\beta\nu) + i\gamma_X][w_1(\alpha) + i\gamma_K]}. \end{aligned} \qquad (A.19)$$

On obtient l'expression asymptotique de $d_{\delta\nu\rho\sigma}(t)$ pour $t \to \infty$ à l'aide d'un théorème de Taubar [18] pour la transformation de Laplace [cette expression asymptotique demande de considérer le pôle le plus à droite de $D_{\delta\nu\rho\sigma}(s)$ qui provient du zéro de $w_4(\delta\nu\rho\sigma)$]

$$d_{\gamma\nu\rho\sigma}(t) = \frac{\left\{\begin{aligned} & \langle\delta\sigma\,|\,H\,|\,\gamma\rangle\langle\gamma\rho\,|\,H_X\,|\,\beta\rangle\langle\beta\nu\,|\,H_K\,|\,\alpha\rangle c_\alpha \\ & \quad \times \exp\left[-i(\varepsilon_\delta + \omega_\nu + \omega_\rho + \omega_\sigma)\frac{t}{\hbar}\right] \end{aligned}\right\}}{\left\{\begin{aligned} & (\varepsilon_{\delta,\gamma} + \omega_\sigma + i\gamma_C)(\varepsilon_{\delta,\beta} + \omega_\rho + \omega_\sigma + i\gamma_X) \\ & \quad \times(\varepsilon_{\delta,\alpha} + \omega_\nu + \omega_\rho + \omega_\sigma + i\gamma_K) \end{aligned}\right\}}, \qquad (A.20)$$

avec la notation

$$\varepsilon_{\lambda,\mu} = \varepsilon_\lambda - \varepsilon_\mu. \qquad (A.21)$$

On peut obtenir les expressions générales pour les corrélations angulaires des rayonnements ν, ρ, σ ou pour les distributions angulaires à partir de (A.20). Nous donnons comme exemple l'expression pour la distribution angulaire du rayonnement σ des noyaux orientés dans l'état A :

$$\begin{aligned} W(\mathbf{k}_\sigma) = {} & S_{\nu\rho\sigma}\int_0^\infty d\omega_\nu \\ & \times \int_0^\infty d\omega_\rho \int_0^\infty d\omega_\sigma \Sigma_\delta\,|\,d_{\delta\nu\rho\sigma}\,|^2, \end{aligned} \qquad (A.22)$$

où $S_{\nu\rho\sigma} = S_\nu S_\rho S_\sigma$; S_ν et S_ρ somment sur les directions d'émission et sur les polarisations des rayonnements ν et ρ; S_σ somme sur les polarisations du rayonnement σ; $\mathbf{k}_\sigma$: direction d'émission de σ.

L'équation (A.22) se réduit, après intégration, à

$$\begin{aligned} W(\mathbf{k}_\sigma) = {} & \frac{\pi^3}{\gamma_K\gamma_X\gamma_C}\Sigma_{\alpha,\beta,\gamma,\delta,\alpha',\beta',\gamma'}S_{\nu\rho\sigma}\rho_{\alpha\alpha'} \\ & \times \frac{\left\{\begin{aligned} & \langle\delta\,|\,H(\mathbf{k}_\sigma)\,|\,\gamma\rangle\langle\delta\,|\,H(\mathbf{k}_\sigma)\,|\,\gamma'\rangle^* \\ & \times\langle\gamma\rho\,|\,H_X\,|\,\beta\rangle\langle\gamma'\rho\,|\,H_X\,|\,\beta'\rangle^* \\ & \times\langle\beta\nu\,|\,H_K\,|\,\alpha\rangle\langle\beta\nu\,|\,H_K\,|\,\alpha'\rangle^* \end{aligned}\right\}}{\left\{\begin{aligned} & (1 + i\varepsilon_{\gamma\gamma'}\tau_C) \\ & \quad \times(1 + i\varepsilon_{\beta\beta'}\tau_X)(1 + i\varepsilon_{\alpha\alpha'}\tau_K) \end{aligned}\right\}}, \end{aligned} \qquad (A.23)$$

avec [3]

$$\tau_C = \frac{1}{2\gamma_C}; \qquad \tau_X = \frac{1}{2\gamma_X}; \qquad \tau_K = \frac{1}{2\gamma_K}, \qquad (A.24)$$

$$\langle \delta\sigma \mid H \mid \gamma \rangle = \langle \delta \mid H(\mathbf{k}_\sigma) \mid \gamma \rangle. \qquad (A.25)$$

Nous avons caractérisé l'orientation des noyaux dans l'état A par la « matrice de densité » $\rho_{\alpha\alpha'}$; on a, pour un état pur : $\rho_{\alpha\alpha'} = c_\alpha c^*_{\alpha'}$, mais (A.23) reste valable pour un état mélangé.

Appendice II. — *Discussion du lemme* :

$$i\,\Sigma_{\beta\nu} \frac{\langle \alpha \mid H_K \mid \beta\nu \rangle \langle \beta\nu \mid H_K \mid \alpha' \rangle}{i\hbar s - (\varepsilon_\beta + \omega_\nu) + i\gamma_X} = \gamma_K \delta_{\alpha\alpha'}. \qquad (A.26)$$

[Les exemples (A.12)-(A.16) sont analogues.]

Dépendance de s. — Posons $\hbar s = \eta - i\omega\, (\eta > 0)$. Le dénominateur de (A.26) s'écrit

$$i\hbar s - (\varepsilon_\beta + \omega_\nu) + i\gamma_X$$
$$= \omega - (\varepsilon_\beta + \omega_\nu) + i(\eta + \gamma_X). \qquad (A.27)$$

Ce qui nous intéresse surtout c'est le comportement de (A.26) dans le voisinage de

$$\hbar s = \eta - i\omega \approx -i(\varepsilon_\beta + \omega_\nu),$$

parce que le pôle de $D_{\delta\nu\rho\sigma}(s)$ est situé à cette valeur de s [*voir* zéro de $w_4(\delta\nu\rho\sigma)$ dans (A.19); ici il faut prendre pour les ω leurs « valeurs de conservation » $\omega_\nu = \varepsilon_{\alpha,\beta}$, $\omega_\rho = \varepsilon_{\beta,\gamma}$, $\omega = \varepsilon_{\gamma,\delta}$].

Ceci donne l'expression asymptotique de $d_{\delta\nu\rho\sigma}(t)$ [*voir* (A.20)]. La sommation $\Sigma_{\beta\nu}$ dans (A.26) contient une intégration sur toutes les énergies ω_ν du rayonnement ν. Si la fonction $F(k)$ varie lentement avec k, on a

$$\int_{-\infty}^{+\infty} (k - \omega - i\eta)^{-1} F(k)\, \mathrm{d}k \approx \pi i F(\omega), \qquad (A.28)$$

intégrale qui varie peu avec $\hbar s = \eta - i\omega$. On peut appliquer ce résultat à (A.26), où nous écrivons $\Sigma_{\beta\nu} = S_{\beta\nu} \int \mathrm{d}\omega_\nu$; $S_{\beta\nu}$ indique la sommation sur les nombres quantiques de moment angulaire. Ainsi nous trouvons pour $\alpha = \alpha'$,

$$\gamma_K = \pi S_{\beta\nu} |\langle \alpha \mid H_K \mid \beta\nu \rangle|^2, \qquad (A.29)$$

de façon que $\frac{2\gamma_K}{\hbar}$ soit la probabilité de transition totale de A vers B. D'une façon générale on trouve après l'intégration $\int \mathrm{d}\omega_\nu$,

$$\langle \alpha \mid \rho \mid \alpha' \rangle = \pi S_{\beta\nu} \langle \alpha \mid H_K \mid \beta\nu \rangle \langle \beta\nu \mid H_K \mid \alpha' \rangle \qquad (A.30)$$

ce qui peut s'écrire aussi

$$\langle \alpha \mid \rho \mid \alpha' \rangle = \pi S_{\beta\nu} S_{\beta'\nu'} \langle \alpha \mid H_K \mid \beta\nu \rangle$$
$$\times \langle \beta\nu \mid \rho_0 \mid \beta'\nu' \rangle \langle \beta'\nu' \mid H_K \mid \alpha' \rangle, \qquad (A.31)$$

avec

$$\langle \beta\nu \mid \rho_0 \mid \beta'\nu' \rangle = \delta_{\beta\beta'} \delta_{\nu\nu'}. \qquad (A.32)$$

[3] On trouve que $\frac{2\gamma_K}{\hbar}$ est la probabilité de transition totale de A vers B [*voir* (A.29)]. Alors $\hbar\tau_K$ est la vie moyenne de l'état A. Analogue à τ_X et τ_C.

On peut interpréter (A.31) comme l'équation reliant les matrices de densité ρ_0 et ρ de la façon usuelle pour la méthode de perturbations du premier ordre.

ρ_0 représente un ensemble de symétrie sphérique selon (A.32) [9]. Maintenant nous supposons *qu'il n'existe pas des champs externes* [*isotropie de l'espace* (A.33)]. Il résulte que ρ aussi doit représenter un ensemble de symétrie sphérique. Ceci donne la forme

$$\langle \alpha \mid \rho \mid \alpha' \rangle = \gamma_K \delta_{\alpha\alpha'} \qquad (\gamma_K \text{ indépendant de } \alpha \text{ et } \alpha') \qquad (A.34)$$

si les α sont des nombres quantiques magnétiques. On peut conclure de (A.30) à (A.34) d'une façon directe en utilisant la relation d'orthogonalité des coefficients de Clebsch-Gordan si les α, β et ν sont tout simplement des nombres quantiques magnétiques.

Appendice III. — *Les facteurs d'atténuation ne dépendent que des caractéristiques du niveau.*

Démonstration. — Si l'on considère un certain niveau intermédiaire, l'équation (A.23) peut s'écrire

$$W = \Sigma_{\beta\beta'} \frac{\langle \beta' \mid \rho^{(2)} \mid \beta \rangle \langle \beta \mid \rho^{(1)} \mid \beta' \rangle}{1 + i\varepsilon_{\beta\beta'}\tau}, \qquad (A.35)$$

où $\rho^{(1)}$ contient tout ce qui précède et $\rho^{(2)}$ tout ce qui suit le niveau B. Nous supposons maintenant que β et β' sont des abréviations et que les sous-niveaux sont déterminés par j_β et m_β (spin du noyau); $J_e M_e$ (moment angulaire du cortège électronique).

Ensuite nous supposons :

Il y a symétrie sphérique pour la distribution de $\mathbf{J}_e$ dans $\rho^{(1)}$; il n'y a pas d'observation des directions de $\mathbf{J}_e$ dans $\rho^{(2)}$. (A.36)

$$\langle j_\beta m_\beta J_e M_e \mid \rho^{(1)} \mid j_{\beta'} m_{\beta'} J_{e'} M_{e'} \rangle$$
$$= \langle j_\beta m_\beta \mid \rho_n^{(1)} \mid j_{\beta'} m_{\beta'} \rangle \delta_{J_e J_{e'}} \delta_{M_e M_{e'}}, \qquad (A.37)$$

$$\langle j_\beta m_\beta J_e M_e \mid \rho^{(2)} \mid j_{\beta'} m_{\beta'} J_{e'} M_{e'} \rangle$$
$$= \langle j_\beta m_\beta \mid \rho_n^{(2)} \mid j_{\beta'} m_{\beta'} \rangle \delta_{J_e J_{e'}} \delta_{M_e M_{e'}} \qquad (A.38)$$

(le plus souvent on aura $j_\beta = j_{\beta'}$ et $J_e = J_{e'}$).

Nous définissons

$$\mathbf{F} = \mathbf{j}_\beta + \mathbf{J}_e. \qquad (A.39)$$

Il résulte de (A.33) (isotropie de l'espace) que les valeurs de $\varepsilon_{\beta\beta'}$ ne peuvent dépendre que des valeurs de F mais non pas de m_F qui ne donne qu'une orientation dans l'espace

$$\varepsilon_{\beta\beta'} = \varepsilon_{FF'}. \qquad (A.40)$$

Il faut transformer la représentation en $(j_\beta m_\beta J_e M_e)$ de $\rho^{(1)}$ et $\rho^{(2)}$ dans la représentation en $(j_\beta J_e F m_F)$; ce qui se fait par les coefficients de Clebsch-Gordan. D'où W peut s'écrire selon (A.35)

$$W = \sum_{\substack{F m_F \\ F' m_{F'}}} \frac{\langle F' m_{F'} \mid \rho^{(2)} \mid F m_F \rangle \langle F m_F \mid \rho^{(1)} \mid F' m_{F'} \rangle}{1 + i\varepsilon_{FF'}\tau} \qquad (A.41)$$

et cette expression se réduit à

$$W=\sum_{\substack{m_\beta m_{\beta'}\\ \overline{m}_\beta \overline{m}_{\beta'}}}\langle j_\beta \overline{m}_\beta | \rho_n^{(2)} | j_\beta \overline{m}_{\beta'}\rangle S(\overline{m}_\beta \overline{m}_{\beta'} m_\beta m_{\beta'}) \times \langle j_\beta m_\beta | \rho_n^{(1)} | j_\beta m_{\beta'}\rangle, \quad (A.42)$$

avec

$$S(\overline{m}_\beta \overline{m}_{\beta'} m_\beta m_{\beta'}) = \sum_{\substack{M_e M_{e'}\\ F m_F, F' m_{F'}}} \langle F' m_{F'} | j_\beta \overline{m}_\beta J_e M_e\rangle \times \langle j_\beta \overline{m}_{\beta'} J_e M_{e'} | F m_F\rangle \times \langle F m_F | j_\beta m_\beta J_e M_{e'}\rangle \langle j_\beta m_{\beta'} J_e M_{e'} | F' m_{F'}\rangle \times (1+i\varepsilon_{FF'}\tau)^{-1}. \quad (A.43)$$

Utilisant les formules de Racah [3], [4], la somme sur $m_F m_{F'} M_e M_{e'}$ peut se faire en (A.43) et donne

$$S(\overline{m}_\beta \overline{m}_{\beta'} m_\beta m_{\beta'}) = \Sigma_{kq}\frac{(2k+1)}{(2j_\beta+1)}\langle j_\beta \overline{m}_{\beta'} | j_\beta \overline{m}_\beta k q\rangle \times \langle j_\beta m_\beta | j_\beta m_{\beta'} k q\rangle Q_k, \quad (A.44)$$

avec l'expression suivante pour Q_k [équivalent à (2.4)]

$$Q_k=\Sigma_{FF'}\frac{(2F+1)(2F'+1)W^2(F'jFj;J_e k)}{(2J_e+1)(1+i\varepsilon_{FF'}\tau)}. \quad (A.45)$$

Si l'on n'a pas de couplage avec le cortège électronique, on a

$$\left.\begin{aligned} &\varepsilon_{FF'}=0, \qquad Q_k=1;\\ &S(\overline{m}_\beta \overline{m}'_\beta m_\beta m'_\beta)=\delta_{\overline{m}_\beta m'_\beta}\delta_{\overline{m}'_\beta m_\beta}. \end{aligned}\right\} \quad (A.46)$$

Si l'on emploie (A.46) dans (A.42) on obtient le point de départ usuel sans précession dans l'état intermédiaire pour la dérivation des formules de distribution angulaire.

Lorsqu'il y a précession, on obtient de la manière usuelle [3], [4], [11]

$$\langle j_\beta m_\beta | \rho_n^{(1)} | j_\beta m'_\beta\rangle = \Sigma_{k_1} N(k_1)\left(\frac{2k_1+1}{2j_\beta+1}\right)^{\frac{1}{2}}\langle j_\beta m_\beta | j_\beta m'_\beta k_1 0\rangle \quad (A.47)$$

analogue à

$$\langle j_\beta \overline{m}_\beta | \rho_n^{(2)} | j_\beta \overline{m}'_\beta\rangle = \Sigma_{k_2} N(k_2)\left(\frac{2k_2+1}{2j_\beta+1}\right)^{\frac{1}{2}}\langle j_\beta \overline{m}_\beta | j_\beta \overline{m}'_\beta k_2 0\rangle. \quad (A.48)$$

Les coefficients N caractérisent les transitions.

Dans le cas *a* (*voir* § 2)

$$N(k_1)\sim f_{k_1} \quad \text{et} \quad N(k_2)\sim P_{k_2}(\cos\theta_2). \quad (A.49)$$

Dans le cas *b* (*voir* § 2)

$$N(k_1)\sim P_{k_1}(\cos\theta_1) \quad \text{et} \quad N(k_2)\sim P_{k_2}(\cos\theta_2). \quad (A.50)$$

On obtient la formule (2.2) à l'aide de (A.45) et (A.47) à (A.50), utilisant des relations d'orthogonalité pour les coefficients de Clebsch-Gordan.

Les Q_k selon (A.45) sont les facteurs d'atténuation (dérivés d'une façon qui n'est indépendante d'aucune hypothèse sur les rayonnements).

Intervention de M. Halban après la Communication de M. de Groot. — L'expérience faite à Leyde ne semble seulement montrer que tout dérangement venant de la réorganisation du cortège électronique a la même influence sur les deux distributions angulaires.

Réponse de M. de Groot. — L'expérience de Leyde prouve qu'il n'existe pas de perturbation sensible dans le niveau entre les deux rayonnements γ.

Intervention de M. Deutsch. — Dans des transitions du cortège on a des changements du moment angulaire total F de l'atome qui correspondent à des réorientations du spin nucléaire. Y a-t-il une raison simple ou intuitive pour laquelle ce phénomène soit négligeable ?

Réponse de M. de Groot. — Une perturbation ne peut intervenir que par un couplage avec le moment magnétique ou électrique du noyau. Nous avons considéré uniquement des précessions statiques, mais des effets dynamiques pourraient exister en principe.

BIBLIOGRAPHIE.

[1] *Voir* bibliographie dans : Groot S. R. de et Tolhoek H. A. — Theory of angular effects of radiation from oriented nuclei. Contribution au livre : β and γ Spectroscopy (rédaction K. Siegbahn).
[2] *Voir* bibliographie dans : Groot S. R. de. — *Physica*, 1952, **18**, 1201.
[3] Racah G. — *Phys. Rev.*, 1942, **62**, 438.
[4] Racah G. — *Phys. Rev.*, 1951, **84**, 910.
[5] Grace M. A. et Halban H. — *Physica*, 1952, **18**, 1227.
[6] *Voir* bibliographie dans : Frauenfelder H. — *Ann. Rev. Nucl. Sc.*, 1952, **2**, 129.
[7] Abragam A. et Pound R. V. — *Phys. Rev.*, 1953, **92**, 943.
[8] Tolhoek H. A. et Cox J. A. M. — *Physica*, 1953, **19**, 101.
[9] Cox J. A. M. et Tolhoek H. A. — *Physica*, 1953, **19**, 673.
[10] Cox J. A. M. et Groot S. R. de. — *Physica*, 1953, **19**, 683.
[11] Cox J. A. M. et Tolhoek H. A. — *Physica*, 1953, **19**, 1178.
[12] Alder K. — *Helv. Phys. Acta*, 1953, **26**, 761.
[13] Biederharn L. C. et Rose M. E. — *Rev. Mod. Phys.*, 1953, **25**, 729.
[14] Kopfermann H. — Kernmomente (Akademische Verlagsgesellschaft), Leipzig, 1940.
[15] Sommerfeld A. — Atombau und Spectrallinien II (Verlag Vieweg u. Sohn), Brunswick, 1939.
[16] Burhop E. H. S. — *Proc. Roy. Soc.*, 1953, **148**, 272.
[17] Tralli N. et Goertzel G. — *Phys. Rev.*, 1951, **83**, 399.
[18] Tout livre sur la transformation de Laplace, par exemple : Churchill R. V. — Modern Operational Mathematics in Engineering (Mac Graw-Hill Book Company, Inc., New-York, 1944).

QUELQUES ASPECTS DE L'INFLUENCE DU CORTÈGE ÉLECTRONIQUE SUR L'ÉMISSION DES RAYONNEMENTS NUCLÉAIRES

Par M. A. GRACE,

The Clarendon Laboratory, Oxford (Angleterre).

Summary. — It is shown that in the angular correlation of the γ-rays in ^{60}Ni no influence arises through electronic relaxation phenomena : this result is considered in relation to nuclear orientation experiments. The isotropic distribution of γ-radiation from oriented ^{57}Co nuclei is discussed.

1. **Introduction.** — Avec la précision croissante des instruments détecteurs et avec le développement de techniques nouvelles, l'influence du voisinage atomique sur la désintégration des noyaux a acquis une grande importance. Il s'agit d'une part de l'influence sur la période de désintégration, d'autre part de la perturbation des états nucléaires excités apportée par les champs électrique et magnétique au voisinage du noyau, comme l'ont très bien montré les groupes de chercheurs de Zurich et de l'Université d'Illinois.

Un autre domaine où de tels effets peuvent acquérir une grande importance est celui de l'orientation nucléaire dans laquelle des champs atomiques ou produits à l'extérieur servent à polariser les noyaux. Dans ce cas les noyaux dont on examine le rayonnement sont orientés par les champs atomiques lorsque la température est assez faible pour que seuls les sous-états nucléaires les plus bas soient occupés. Quand ce rayonnement est émis directement par les noyaux qui ont été orientés, il est clair que l'on n'aura aucune influence perturbatrice, mais si la transition radiative est précédée d'autres transitions provenant par cascade d'un état orienté originel, on doit s'attendre à une certaine perturbation des états consécutifs, apportée par leur interaction avec les champs extranucléaires.

2. **Perturbation de l'orientation nucléaire dans le cobalt 60.** — Les premières expériences d'orientation nucléaire [1], [2] ont été effectuées avec ^{60}Co. Le schéma suivant servira à illustrer la discussion.

Le rayonnement γ observé est précédé dans la cascade par une transition β; l'occupation des sous-états du niveau 1, qui gouverne la distribution du rayonnement γ, dépend non seulement de l'occupation des sous-états fondamentaux du ^{60}Co et des moments angulaires compris dans la transition, mais aussi du couplage du niveau 1 avec les champs extranucléaires. L'importance de ces champs dans l'induction des transitions entre ces sous-états, dépendra de la vie moyenne T_1 du niveau, de son moment nucléaire, de la grandeur des champs statiques ou variables et peut-être du temps de relaxation pour l'échange d'énergie entre l'atome et le réseau. Une telle perturbation peut se produire si $\frac{T_1 \Delta E_1}{h} \sim 1$ ou > 1, ΔE_1 étant l'intervalle entre les

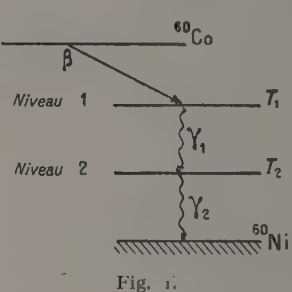


Fig. 1.

sous-états dans le champ (si le champ varie avec le temps à cause de l'effet de recul, par exemple, il faudra tenir compte des termes dépendant de la variation du champ, mais on devra toujours avoir des valeurs du champ telles que ΔE_1 satisfasse cette relation).

Ce critère est aussi invoqué dans les expériences de corrélation angulaire. Mais dans le cas présent, il est nécessaire que les transitions soient induites entre les sous-états dans l'intervalle de temps T_1 pour observer une perturbation quelconque tandis que dans les corrélations angulaires, il est seulement nécessaire que le noyau ait une direction de précession différente de celle de l'émission du rayonnement.

De telles perturbations extérieures peuvent provenir de :

1° Recul du noyau dû à l'émission β dans les champs variables.

2° Champs fluctuants dus à l'ionisation ou à l'excitation de l'atome pendant la désintégration β : ce cas serait particulièrement important au cours de la capture K où l'ionisation multiple est fréquente.

3° Couplage par l'intermédiaire du champ h. f. s. avec les vibrations thermiques du réseau.

Des considérations semblables s'appliquent à

l'état 2 ; de même si $\frac{T_2 \Delta E_2}{\hbar} \sim 1$ ou > 1, on peut trouver une certaine déviation à partir de la distribution angulaire théorique (naturellement, si le niveau 2 n'est pas perturbé la distribution angulaire de γ_2 peut néanmoins différer de la distribution théorique à cause de la perturbation apportée au niveau 1), mais dans ce cas, une mesure de corrélation angulaire effectuée dans les conditions d'une expérience d'orientation nucléaire ne donnera pas les mêmes résultats que la corrélation non perturbée puisque les champs qui perturbent l'orientation nucléaire perturberont la corrélation angulaire. Inversement, l'observation dans ces conditions, de la corrélation angulaire complète, montre l'absence de toute perturbation des sous-états nucléaires du niveau 2.

3. **Corrélation angulaire des rayons dans le cobalt 60.** — M. Lemmer a effectué une telle mesure de corrélation angulaire au Laboratoire de Clarendon [3] en utilisant un petit cristal paramagnétique ($ZnSO_4$, Rb_2SO_4, $6H_2O$) analogue aux spécimens utilisés dans les mesures d'orientation et contenant du ^{60}Co. L'axe magnétique K_1 est placé normalement aux plans des détecteurs de façon que la perturbation observée sur la corrélation angulaire soit maxima.

Trois séries d'expériences sont effectuées :

1° Avec une petite source métallique. Dans ce cas on doit s'attendre à une corrélation angulaire complète : Lawson et Frauenfelder [4] ont montré qu'une source de cette forme ne donne aucun effet de perturbation. On obtient pour $\varepsilon \; \frac{W(0) - W\left(\frac{\pi}{2}\right)}{W\left(\frac{\pi}{2}\right)}$ la valeur $0{,}143 \pm 0{,}002$ à comparer à la valeur théorique 0,142 que l'on doit trouver dans les conditions géométriques utilisées. Cette mesure a servi de base de comparaison et de test pour l'appareillage expérimental.

2° Avec une source cristalline à 288° K. Dans ce cas, on devrait avoir une certaine perturbation produite par le recul dû au premier rayonnement γ ou par l'ionisation de l'atome. On ne peut, cependant, avoir aucun effet dû au couplage avec les vibrations thermiques du réseau à cause de la faible durée du temps de relaxation spin-réseau T_ρ : à la température du laboratoire, on a montré d'après l'impossibilité de résoudre les raies des spectres de résonance paramagnétique, que ce temps de relaxation était inférieur à 10^{-11} s. Ceci a pour effet, comme l'ont montré Abragam et Pound [5], de produire près du noyau une variation continuelle de la direction du champ, de sorte que, si T_ρ est très inférieur à T_2, vie moyenne de l'état 2, la valeur moyenne du champ près du niveau tendra vers zéro; on a trouvé dans ce cas pour ε la valeur $0{,}142 \pm 0{,}003$.

3° Avec le même cristal à la température de 20° K. Les effets de recul et d'ionisation devraient toujours se faire sentir, de même que la perturbation provenant du couplage avec le champ atomique. La conséquence d'un refroidissement de ces sels à 20° K est un allongement du temps de relaxation jusqu'à environ 10^{-7} s ou plus, comme on peut le déduire des mesures de largeur de raies dans les expériences de résonance paramagnétique. On obtient une valeur $\varepsilon = 0{,}144 + 0{,}005$.

D'après ces mesures, on peut conclure que le paramètre $\frac{T_2 \Delta E_2}{\hbar} \ll 1$ et que la réorientation due aux effets de recul ou d'ionisation est négligeable. En supposant qu'aucun phénomène nouveau de perturbation n'apparaîtrait si la température était réduite jusqu'à 0,01° K environ, on peut conclure de ces expériences qu'aucune perturbation ne suit l'émission du premier rayonnement γ dans le niveau 2 dans les mesures faites avec les noyaux orientés.

Il n'est cependant pas possible d'en déduire qu'aucune perturbation n'est causée au niveau 1 et il serait très intéressant d'effectuer des expériences auxiliaires pour éclaircir ce problème, par exemple des mesures indépendantes du spin et du moment magnétique du ^{60}Co.

4. **Orientation nucléaire du cobalt 57.** — La distribution isotrope du rayonnement γ émis dans la désintégration du ^{57}Co suggère qu'une perturbation est provoquée dans les expériences d'orientation dans la capture K.

La figure 2 montre le schéma de désintégration de ce noyau.

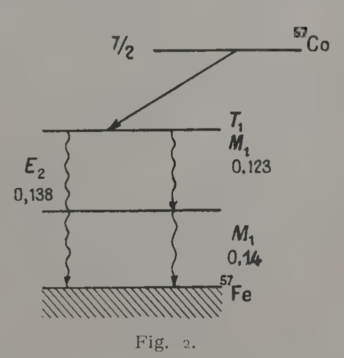


Fig. 2.

Le spin $\frac{7}{2}$ et le moment magnétique [8] (4,6 n. m.) du ^{57}Co ont été mesurés. En raison du choix limité dans la désignation des spins possibles, on peut prédire qu'une anisotropie importante doit s'observer pour le rayonnement γ de 0,123 MeV provenant des noyaux de ^{57}Co orientés. En fait, on n'a observé aucune anisotropie bien que l'on puisse être sûr d'un refroidissement effectif de la matière expéri-

mentée, le rayonnement émis à partir du ^{56}Co présent dans le cristal en faibles proportions étant lui-même anisotrope.

Cette absence d'anisotropie peut provenir de trois causes :

a. La transition $M1$ est impure et contient 3 pour 100 d'une addition $E2$. Cette explication exige le mélange fortuit de la quantité voulue de $E2$ (restreinte entre des limites plutôt étroites à cause de la complète absence de toute anisotropie) et par conséquent n'est pas très satisfaisante.

b. Les détecteurs à scintillation utilisés ne permettent pas de séparer effectivement la faible transition transverse. Si cette transition a une intensité égale à 70 pour 100 de la transition principale, son diagramme polaire pourrait donner à la distribution résultante l'apparence isotropique. La mesure expérimentale de l'intensité de cette transition montre qu'elle se situe entre 5 et 12 pour 100 et probablement plus près de la valeur la plus faible. Ceci ne semble donc pas expliquer l'effet considéré, bien qu'il puisse y contribuer.

c. La vie moyenne T_1 est suffisamment longue pour permettre au champ atomique variable provenant du phénomène de capture K d'induire des transitions entre les sous-états nucléaires, laissant ainsi le système orienté au hasard. Il n'a été possible de donner aucune confirmation de cette interprétation, puisque T_1 n'a pas été mesuré (bien que des expériences sont actuellement en cours) et puisque les valeurs des champs qui interviennent dans la capture K et du moment nucléaire de l'état considéré ne sont pas connus. D'après les données expérimentales, il semble possible que T_1 puisse durer jusqu'à 10^{-6} s (bien que les données provenant de l'excitation coulombienne seraient en faveur d'une vie moyenne considérablement plus courte $\sim 10^{-10}$ s), ce qui permettrait à une certaine perturbation de l'état de se produire.

D'un autre côté, l'isotope ^{58}Co ne montre dans la capture K aucun affaiblissement important d'anisotropie [9] et par conséquent si (*c*) est l'explication correcte, les moments magnétiques ou les vies moyennes de ces états excités (ou les deux à la fois) doivent être très différents.

Intervention de M. Heer. — Dans le cas du ^{57}Co on pourrait établir facilement si l'isotropie est produite par un mélange de $E2$ et $M1$ dans la première transition. Il faudrait seulement mesurer les coefficients A_2 et A_4 séparément et pas seulement l'anisotropie $\omega(\pi)\left[W\left(\frac{\pi}{2}\right)\right] - 1$.

Réponse de M. Grace. — J'accorde qu'une mesure exacte de la distribution angulaire permettrait en principe de vérifier cette hypothèse.

Intervention de M. de Groot. — Peut-on expliquer l'énorme différence ou les perturbations produites pour ^{57}Co et ^{58}Co ?

Réponse de M. Grace. — Il est possible qu'il faille attribuer la grande différence de perturbation à la différence entre les vies moyennes des deux états excités. En d'autres termes, on aurait peut-être ainsi une méthode pour mesurer la vie moyenne du niveau de ^{58}Fe excité produit pendant la décroissance de ^{58}Co.

Intervention de M. Abragam. — Quelle est l'énergie de la capture K dans la désintégration de ^{57}Co ?

Intervention de M. Grace. — L'énergie de désintégration déduite des mesures de masses nucléaires de Collins, Nier et Johnson est de $0{,}6 \pm 0{,}5$ MeV. D'autre part, si l'on suppose qu'il s'agit d'une transition permise, l'énergie devrait être d'environ 0,2 MeV. En aucun cas l'énergie de recul du noyau résiduel ne peut dépasser 5 eV environ.

Intervention de M. Rose. — Le degré d'orientation pourrait-il changer suffisamment, après une capture K ou une transition β, pour réduire l'anisotropie à une valeur trop faible pour être observée ?

Réponse de M. de Groot. — Le changement d'orientation dû à une émission β de capture K ne change pas l'ordre de grandeur des paramètres d'orientation nucléaire. (Il n'en serait pas de même de la précession du spin nucléaire consécutive.)

BIBLIOGRAPHIE.

[1] Daniels J. M., Grace M. A. et Robinson F. N. H. — *Nature* (London), 1951, **168**, 780.

[2] Bleaney B., Daniels J. M., Grace M. A., Halban H., Kurti N., Robinson F. N. H. et Simon F. E. — *Proc. Roy. Soc.*, 1954, **221**, 170.

[3] Lemmer H. R. et Grace M. A. (non publié).

[4] Lawson J. S. et Frauenfelder H. — *Phys. Rev.*, 1953, **91**, 649.

[5] Abragam A. et Pound R. V. — *Phys. Rev.*, 1953, **92**, 943.

[6] Alburger D. E. et Grace M. A. — *Proc. Phys. Soc.* 1954, **67**, 280.

[7] Grace M. A., Halban H., Johnson C. E., Kurti N. et Lemmer H. R. (non publié).

[8] Baker J. M., Bleaney B., Bowers K. D., Shaw P. F. D. et Trenam R. S. — *Proc. Phys. Soc.*, 1953, **66**, 305.

[9] Daniels J. M., Grace M. A., Halban H., Kurti N. et Robinson F. N. H. — *Phil. Mag.*, 1952, **43**, 1297.

LE RENDEMENT DE FLUORESCENCE

Par E. H. S. BURHOP,
University College, Londres.

Summary. — It is shown that when allowance is made for screening and relativistic effects the variation with Z of the fluorescence yield ϖ, is expected to be of the form

$$\left(\frac{\varpi}{1-\varpi}\right)^{\frac{1}{4}} = A + BZ + CZ^3,$$

where the constant A includes the effect of screening and C that of relativity. Values of A, B and C are determined from a least squares fit of the K series fluorescence yield experimental data and values in good agreement with theoretical expectations are obtained.

Values of A and B (assuming $C = 0$) are also obtained from a least square fit of the rather meagre L series data. The best values for L and M series yield are also discussed.

Beaucoup de phénomènes associés à des réarrangements dans la configuration électronique d'un atome, consécutifs à une désintégration radioactive, nécessitent pour leur interprétation une connaissance du facteur de fluorescence ϖ. Dans certains cas, une valeur précise de cette quantité est nécessaire. Par exemple, dans les expériences de Langevin et Radvanyi (1954) sur le rapport $\frac{\text{capture } L}{\text{capture } K}$ du ^{79}Kr, un changement de la valeur estimée du facteur de fluorescence du brome de 0,57 à 0,63 modifierait la valeur de ce rapport de 0,25 à 0,10.

Malheureusement les mesures expérimentales et les calculs théoriques du facteur de fluorescence ne sont pas assez précis et constituent la plus grande source d'incertitude dans les mesures de ce type. Cette Communication discutera l'état présent de nos connaissances des facteurs de fluorescence (ϖ_K, ϖ_L).

1. La détermination expérimentale de ϖ. — Les méthodes suivantes sont possibles pour la mesure de ϖ.

a. La comparaison directe, par chambres d'ionisation ou autres dispositifs de détection, de l'intensité de la radiation X de fluorescence produite dans une cible, à l'intensité de la radiation X incidente de plus grande fréquence. Le facteur de fluorescence, dans ce cas, est calculé directement à partir de la connaissance des valeurs d'absorption des rayons X et de la géométrie du système de détection. Habituellement, cette méthode implique la comparaison de l'intensité de deux faisceaux de rayons X d'intensité largement différente. Pour des valeurs de ϖ d'environ 0,5, une précision de quelques pour-cent est couramment envisagée. Néanmoins les résultats des mesures utilisant cette méthode, n'atteignent pas cette précision et pour de faibles valeurs de ϖ, les précisions obtenues sont seulement de 10 à 15 pour 100. Parallèlement, pour des valeurs de ϖ proches de l'unité, l'erreur sur $1-\varpi$ peut être assez grande. Récemment, cette méthode a été appliquée par Roos (1954) en utilisant comme détecteur un compteur à scintillations.

b. La mesure du changement d'ionisation produit dans un gaz par un faisceau de rayons X dont la fréquence traverse une fréquence critique. Cette méthode, qui a été appliquée seulement pour des gaz, nécessite une connaissance du parcours effectif de la radiation dans la chambre d'ionisation, ce qui peut conduire à quelque incertitude. Les valeurs de ϖ obtenues par cette méthode semblent, généralement, être un peu plus élevées que celles obtenues par la méthode *a*.

c. L'usage d'une chambre Wilson pour comparer les nombres d'électrons Auger aux réarrangements radiatifs d'un gaz ionisé dans une couche interne. Cette méthode, en principe plus directe, n'a pas obtenu des résultats en bon accord avec les autres méthodes. Les valeurs de ϖ obtenues sont généralement trop faibles, indiquant une plus grande efficacité de comptage pour les électrons Auger que pour les radiations. La méthode subit les incertitudes statistiques habituelles de telles déterminations.

d. Comptage des réarrangements Auger dans une

émulsion photographique. Cette méthode, appliquée seulement dans un cas (Po), présente les mêmes difficultés que *c*.

La valeur obtenue pour ϖ est aussi très basse comparée aux autres déterminations.

e. Comparaison d'impulsions produites par réarrangements radiatif et Auger dans un compteur proportionnel. Bien qu'essentiellement similaire, en principe, à la méthode *c*, cette méthode peut donner une précision statistique plus grande.

f. Utilisation d'isotopes radioactifs. Pour des isotopes ayant des vides dans une couche interne, vides pouvant être produits par conversion interne ou capture *K*, des mesures de ϖ peuvent être faites en utilisant soit un spectromètre magnétique, soit par absorption avec des compteurs de Geiger. De telles méthodes permettent d'obtenir les valeurs les plus cohérentes pour les cas où ϖ est près de l'unité, la précision dans la détermination de $1-\varpi$ étant de l'ordre de 5 à 10 pour 100.

g. Utilisation de raies X et mesures de largeur de saut d'absorption. Cette méthode utilise les largeurs mesurées expérimentales et les largeurs calculées pour obtenir ϖ.

Le tableau le plus complet et récent de valeurs de ϖ_K a été donné par Broyles, Thomas et Haynes (1953). A ma connaissance, le seul travail récent non inclus dans ce tableau est celui de Roos (1954). Le tableau le plus récent des valeurs de ϖ_L est celui donné par l'auteur (Burhop, 1952, p. 55).

2. **Le calcul de** ϖ. — Il y a près de 20 ans que l'attention a été attirée sur le calcul des valeurs théoriques de ϖ_K. Aucun calcul de ϖ_L n'avait été fait. Les calculs les plus complets sont ceux de Pincherle (1935) et de Burhop (1935). Les premiers étaient faits pour un atome hydrogénoïde, et les derniers pour l'argent. Pour les autres éléments on supposait, d'après Wentzel (1927), que la probabilité de transition Auger, p_A était indépendante de *Z* et que la probabilité de transition radiative, p_R était proportionnelle à Z^4. Ceci conduit à une variation de ϖ_K avec *Z* de la forme

$$\varpi_K = (1 + a_K Z^{-4})^{-1}, \qquad (1)$$

où a_K est une constante.

Cette relation ne tient pas compte de l'effet d'écran sur le facteur de fluorescence.

Plus correctement, il faudrait écrire

$$p_A = A\left(1 + \frac{\sigma_A}{Z}\right), \qquad p_R = R(Z - \sigma_R)^4,$$

où σ_A et σ_R sont des constantes d'écran (σ_A, $\sigma_R \ll Z$).

L'équation (1) peut s'écrire

$$\left(\frac{\varpi}{1-\varpi}\right)^{\frac{1}{4}} = B(Z - \sigma). \qquad (2)$$

Une équation de cette forme a été donnée par Haas (1932), mais il prit σ, un peu arbitrairement, égal à 1.

Pour de grandes valeurs de *Z*, les effets relativistes seront importants comme l'ont montré les calculs de Massey et Burhop (1936). Ces calculs étaient toutefois très incomplets. Les effets relativistes modifieront le calcul des probabilités de transition Auger et radiative, par les changements qu'ils produisent sur les niveaux d'énergie de la couche interne de telle sorte que p_A et p_R seront modifiés par des facteurs de la forme $(1 + rZ^2)$, où *r* est une constante et $rZ^2 \ll 1$.

Ainsi, en tenant compte des corrections d'écran et des corrections relativistes, on doit s'attendre à une variation de ϖ avec *Z* donnée par une équation de la forme

$$\left(\frac{\varpi}{1-\varpi}\right)^{\frac{1}{4}} = A + BZ + CZ^3, \qquad (3)$$

où la constante *A* contient l'effet d'écran et *C* l'effet relativiste.

3° **Les meilleures valeurs de** ϖ. — Il est souvent important de connaître la meilleure valeur de ϖ pour l'utiliser dans l'interprétation des phénomènes de conversion interne et de capture d'électrons orbitaux. Une solution par la méthode des moindres carrés a déjà été obtenue à partir d'une relation de la forme (3) pour les résultats expérimentaux des facteurs de fluorescence de la série *K*. Pour cela, il fut nécessaire d'employer en quelque sorte une technique de pondération. Pour les raisons déjà discutées, les mesures faites à la chambre de Wilson et par l'émulsion photographique, furent ignorées. De plus, les mesures de Balderstone (1926) utilisant la méthode directe (*a*) furent également ignorées. Ces mesures étaient systématiquement élevées et l'erreur estimée dans la détermination de l'angle solide du faisceau collecté était de 15 pour 100, de telle sorte qu'il a paru préférable de ne pas les prendre en considération pour obtenir la solution par les moindres carrés.

Les mesures de Haas (1933) et de Crone (1936) pour des éléments légers utilisant la méthode (*a*), ont été affectées d'un poids statistique unité. L'erreur estimée dans ces déterminations a été de l'ordre de 15 pour 100.

Pour les grands nombres atomiques, où les erreurs sont considérables, les seules mesures prises en considération ont été celles de Steffen, Huber et Humbel (1949) pour le platine et celles de Broyles, Thomas et Haynes (1953) pour le mercure. Un poids de 2 a été affecté à chacune de ces déterminations.

Pour la grande masse des résultats qui concernent les éléments de nombre atomique moyen, et pour lesquels, dans certains cas, une précision de 3 pour 100 est prévue, un poids de 3 a été affecté à toutes les

déterminations postérieures à 1930 et un poids de 2 à toutes celles antérieures.

En tout, 84 déterminations indépendantes furent utilisées pour obtenir la « meilleure solution » de ϖ_K et il est probable que les résultats ne seraient pas très différents si l'on avait utilisé un autre système raisonnable de pondération.

La solution par la méthode des moindres carrés de l'équation (3) donne les valeurs suivantes des constantes A, B et C :

$$A = -0{,}044,$$
$$B = 0{,}0346,$$
$$C = -1{,}35.10^{-6}.$$

Des valeurs de ϖ_K obtenues en employant ces constantes dans (3) et l'erreur standard $\varepsilon(\varpi_K)$ des estimations sont données dans le tableau I.

TABLEAU I.

Z.	ϖ_K.	$\varepsilon(\varpi_K)$.
10	0,0080	0,0018
15	0,050	0,0082
20	0,141	0,018
25	0,290	0,025
30	0,456	0,025
35	0,601	0,020
40	0,708	0,015
45	0,789	0,012
50	0,840	0,008
55	0,876	0,0065
60	0,903	0,0050
80	0,945	0,0025

A étant considéré comme une constante d'écran, on peut exprimer (3) sous la forme

$$\left(\frac{\varpi_K}{1-\varpi_K}\right)^{\frac{1}{4}} = B(Z-\sigma) + CZ^3 + \dots \qquad (4)$$

La valeur trouvée pour σ, soit 1,7, est très raisonnable.

Si C est interprété comme déterminant l'effet de la correction relativiste, l'effet de la relativité pour l'argent est d'augmenter le rendement Auger $1-\varpi$) de 0,140 à 0,187, c'est-à-dire de 33 pour 100; pour l'or, la correction relativiste augmenterait le rendement Auger de 0,020 à 0,057.

Le calcul de Massey et Burhop (1936) permet de dire que les effets relativistes augmenteraient le rendement Auger d'environ 20 pour 100 pour Ag et le doubleraient pour Au. En raison du caractère incomplet de ces calculs, la valeur de C doit être regardée comme en accord convenable avec les résultats de la théorie.

Les calculs non relativistes de Pincherle (1935) et de Burhop (1935) pour Ag, conduiraient à la valeur $B = 0{,}032$ dans (3). Étant donné le caractère grossier de la fonction d'onde utilisée, le bon accord entre la théorie et l'expérience est surprenant.

On dispose de beaucoup moins de résultats expérimentaux concernant les rendements de fluorescence du niveau L, et certains d'entre eux sont difficiles à admettre. On a appliqué la méthode des moindres carrés aux mesures de ϖ_L faites par Lay en 1934, pour l'ionisation primaire produite par fluorescence dans 21 éléments et l'on a obtenu des valeurs qui suivent la loi

$$\left(\frac{\varpi_L}{1-\varpi_L}\right)^{\frac{1}{4}} = A' + B'Z + \dots, \qquad (5)$$

avec

$$A' = 0{,}132, \qquad B' = 0{,}00917.$$

Le tableau II donne quelques valeurs de ϖ_L données par cette expression ainsi que l'erreur standard $\varepsilon(\varpi_L)$ correspondante :

TABLEAU II.

Z.	ϖ_L.	$\varepsilon(\varpi_L)$.
40	0,058	0,006
50	0,108	0,008
60	0,178	0,011
70	0,262	0,012
80	0,359	0,013
90	0,456	0,013

Pour le rendement de fluorescence $\varpi_{L_{III}}$ du sous-niveau L_{III}, les mesures de Küstuer et Arends (1935) concernant sept éléments, celles de Stephenson (1937) concernant trois éléments ont été comparées à la relation (5) donnant

$$A'_{L_{III}} = -0{,}221,$$
$$B'_{L_{III}} = 0{,}0126,$$

Le tableau III donne les valeurs de $\varpi_{L_{III}}$ avec l'erreur standard $(\varepsilon\, \varpi_{L_{III}})$ correspondante :

TABLEAU III.

Z.	$\varpi_{L_{III}}$.	$\varepsilon(\varpi_{L_{III}})$.
75	0,211	0,013
80	0,271	0,014
85	0,342	0,014
90	0,412	0,015

Pour les niveaux L_I et L_{II}, les seules mesures dont on dispose sont celles de Küstner et Arends (1935) et elles semblent si disparates qu'il vaut mieux les ignorer. Il est peut-être préférable d'utiliser les estimations de Kinsey (1948) basées sur les largeurs radiatives calculées en tenant compte de la relativité par Burhop [1, *b*] (1936) et des mesures

des largeurs totales effectuées par Bearden et Snyder (1941), Richtmyer, Barnes et Ramberg (1934) et Paratt (1938).

Les largeurs radiatives calculées sont en bon accord avec les mesures expérimentales réalisées. Par exemple pour Au on a pour la largeur K une valeur de 53 eV déduite du calcul, alors que la mesure expérimentale donne 54 eV; de plus, ces calculs rendent compte d'une manière satisfaisante des intensités relatives des raies de la série K.

Si l'on considère le rendement de fluorescence pour le niveau L_i; on doit se rappeler que dans plusieurs cas, il est grandement affecté par la possibilité de transitions Coster-Kronig.

Les valeurs estimées à partir de largeurs pour les rendements de $L_{\rm I}$, $L_{\rm II}$ et $L_{\rm III}$ sont données dans le tableau IV; les valeurs de l'argent présentent un désaccord considérable avec les mesures de Lay (*cf.* tableau II). Il est difficile de dire lesquelles de ces valeurs peuvent être utilisées; en raison des grandes difficultés de la détermination expérimentale dans cette région on devrait plutôt s'appuyer actuellement sur les mesures de largeurs. Notons que les rendements $\varpi_{L_{\rm III}}$ estimés à partir des largeurs, présentent un accord satisfaisant avec les valeurs données dans le tableau III et basées sur les déterminations expérimentales.

Tableau IV.

Z.	$\varpi_{L_{\rm I}}$.	$\varpi_{L_{\rm II}}$.	$\varpi_{L_{\rm III}}$.
47	0,011	0,032	0,030
75	0,11	0,33	0,20
80	0,09	0,41	0,26
85	0,11	0,49	0,33
90	0,15	0,56	0,39

Pour le niveau M, très peu de valeurs du rendement de fluorescence ont été obtenues. Lay a obtenu la valeur globale 0,06 pour le rendement du niveau M de l'uranium excité par fluorescence. Dans le cas de Ra E, l'ionisation résulte de causes diverses et Jaffe a estimé ce rendement à 0,046.

Les calculs de Richtmyer et Ramberg pour Au permettent de faire une estimation des rendements de fluorescence de chaque sous-niveau M; on obtient les valeurs suivantes :

$$M_{\rm I}:\ 0{,}0050,\qquad M_{\rm II}:\ 0{,}0084,\qquad M_{\rm III}:\ 0{,}0045,$$
$$M_{\rm IV}:\ 0{,}017,\qquad M_{\rm V}:\ 0{,}019.$$

Sous réserves de résultats expérimentaux plus précis, il est bon d'utiliser la formule

$$\varpi_M = 1{,}7.10^{-9}(Z-\sigma)^4,$$

avec la constante d'écran $\sigma = 13$, pour estimer le rendement total du niveau M. Cette expression donne la variation en fonction de Z prévue par la théorie et donne des valeurs de 10 pour 100 supérieures à celles de Lay pour $Z = 92$ et de 10 pour 100 inférieures à celles de Jaffe pour $Z = 83$.

Comme on l'a précisé ci-dessus, il n'existe pas de calculs théoriques à comparer aux estimations de ϖ_L et ϖ_M.

En raison du renouveau d'intérêt porté aux valeurs des rendements de fluorescence, il semble que de nouveaux travaux à la fois théoriques et expérimentaux doivent être entrepris d'urgence pour éclaircir plusieurs discordances.

Résumé. — La variation avec Z des rendements de fluorescence suit la loi

$$\left(\frac{\varpi}{1-\varpi}\right)^{\frac{1}{4}} = A + BZ + CZ^3,$$

où la constante A traduit l'effet d'écran et C celui de la relativité. Les valeurs de A, B et C sont déterminées par la méthode des moindres carrés à partir des résultats expérimentaux relatifs à la série K, et donnent des résultats en accord avec ceux prévus par la théorie.

Les valeurs de A et B en (supposant $C = 0$) sont aussi déterminées par la méthode des moindres carrés appliquée aux résultats expérimentaux plutôt rares concernant les séries L et M.

Intervention de M. Radvanyi. — Je crois que des difficultés des mesures de ϖ_K à la chambre de Wilson sont importantes surtout pour Z petit et non Z grand: pour Z petit les électrons Auger ont une trajectoire très courte et on expliquerait peut être ainsi les trop grandes valeurs de ϖ_K obtenues dans certains cas; pour Z grand les difficultés pourraient venir des trajectoires Auger trop longues avec une densité d'ionisation plus faible et on expliquerait de cette manière les valeurs trop petites de ϖ_K. Les mesures de Martin et Eggleton à la chambre de Wilson paraissent avoir été faites dans de bonnes conditions avec beaucoup de soin; on ne voit pas — mise à part l'erreur statistique — d'où proviendrait une erreur importante dans ce cas.

Réponse de M. Burhop. — Il est difficile de savoir pourquoi les mesures avec la chambre de Wilson donnent de si faibles valeurs pour ϖ_K. Cela ne peut être dû à des erreurs statistiques. Les mesures de Martin et Eggleton étaient très soignées. Elles ont donné pour le krypton la valeur $\varpi_K = 0{,}53$, alors que les mesures de West et Rothwell, faites au compteur proportionnel, ont donné 0,66.

Deuxième intervention de M. Radvanyi. — Pensez-vous qu'en donnant des poids statistiques différents

aux différentes mesures de ϖ_K, par exemple en donnant des poids statistiques plus différenciés, ou bien en donnant des poids statistiques correspondant aux erreurs expérimentales indiquées par les divers auteurs les résultats alors obtenus pour les valeurs moyennes de ϖ_K seraient assez différents, ou bien seraient relativement peu modifiés ?

Les récentes expériences de Roos — faites, d'après l'auteur, avec une erreur de 3 pour 100 — donnent des valeurs de ϖ_K plus petites que les valeurs moyennes. A votre avis quelle serait la précision limite que l'on pourrait obtenir avec des méthodes expérimentales dont on dispose actuellement ?

Deuxième réponse de M. Burhop à M. Radvanyi. — Je crois qu'aucune méthode raisonnable de pondération des mesures n'aurait pu donner des résultats très différents.

Troisième intervention de M. Radvanyi. — Des désaccords avec les prédictions théoriques ont été signalés à différentes reprises pour les intensités relatives des raies. Je crois que certaines expériences indiquaient des résultats qui étaient davantage en accord avec la théorie non relativiste qu'avec la théorie relativiste. En particulier une étude récente d'une équipe canadienne (Johnson et al.) sur les raies Auger de l'argent montrait un désaccord avec la théorie pour les intensités relatives de certaines raies Auger correspondant au niveau L (transitions du type $K \to LL$...). Quelle est votre opinion sur cette question ?

Troisième réponse de M. Burhop à M. Radvanyi. — Les mesures des intensités K totales pour les éléments lourds ne permettent guère de choisir entre les théories relativiste et non relativiste, mais semblent néanmoins, dans l'ensemble, en meilleur accord avec les calculs relativistes.

D'autre part, les intensités Auger relatives pour les processus du type $K \to L_I$, L_I et $K \to L_I$, (L_{II}, L_{III}) semblent en meilleur accord avec les calculs non relativistes pour les éléments lourds.

Il faut avoir présent à l'esprit que les calculs relativistes n'ont jamais été contrôlés par l'expérience et comportent une bonne part d'approximation dans l'évaluation des intégrales.

SPECTROGRAPHIE DES RAYONNEMENTS DE FLUORESCENCE DES RADIOÉLÉMENTS

Par Marcel FRILLEY,

Laboratoire Curie.

Summary. — The ionisation of electronic shells resulting from certain radioactive transmutations is followed by the emission of fluorescent photons. The K and L spectra are considered, then their energy and intensity and the information which can be obtained on the transitions generating them.

Au cours de ce Colloque on a étudié divers modes d'ionisation du cortège électronique associés aux transmutations radioactives, d'où résulte un retour à l'état stable accompagné de l'émission d'un spectre de fluorescence.

On a mis en évidence le fait que cette ionisation n'était produite avec une probabilité assez grande que dans les cas de conversion interne de rayons γ ou de capture électronique. Nous limiterons la présente étude aux spectres des photons de fluorescence consécutifs à ces processus d'ionisation et aux méthodes d'analyse de ces spectres capables de donner des indications sur l'énergie des rayonnements émis : spectrographie par diffraction, utilisation de compteurs proportionnels, absorption sélective. Nous ne considérerons par conséquent que les spectres K et L, ceux d'énergie plus faible (M, ...) ayant été parfois observés sans avoir été l'objet de mesures précises d'intensité. Nous envisagerons les aspects de ces spectres au point de vue de l'énergie et de l'intensité des raies et les renseignements que l'on peut en tirer sur les transitions qui leur ont donné naissance.

Quelques considérations d'ensemble peuvent d'abord être développées.

1° *L'intensité* des spectres de fluorescence est généralement importante, Tsien San-Tsiang évalue à 18 photons par 100 désintégrations l'intensité des spectres K de Ra$(B + C)$, et leur énergie correspond à un bon rendement de la plupart des moyens de détection. Mélangés avec des photons γ nucléaires, les photons de fluorescence ont été confondus avec eux dans les premiers travaux sur les rayons γ. Ainsi lorsque les premières tentatives de spectrographie γ par diffraction ont été faites dès 1914 par Rutherford et Andrade [1] puis par Rutherford et Wooster [2], ce sont en réalité des raies K et L qui ont été enregistrées.

C'est J. Thibaud, en 1926 [3], qui a, le premier, obtenu par diffraction des raies γ dans la famille du Th, mais ses travaux mettent en évidence avec une intensité dominante le spectre K résultant du passage Th$B \rightarrow$ Th$C (Z = 83)$. Identifiés avec une faible précision par Rutherford et ses collaborateurs les spectres K et L émis par les éléments de la famille du Ra ont été mieux définis par Frilley en 1929 [4] et Valadares en 1934 [5] (spectre K). Valadares a étudié ensuite les spectres L de la même famille en 1940 [6]. L. Meitner a observé des raies du RTh en 1928 [7], puis Frilley en 1940 les spectres K juxtaposés de plusieurs éléments de la famille de l'Ac [8]. Ce sont encore les spectres de fluorescence qu'ont obtenus Y. Cauchois et Hulubei quand ils ont appliqué la méthode du cristal courbé à la diffraction du rayonnement γ du Rn [9].

Dans tous ces travaux les spectres de fluorescence ont apparu avec des intensités importantes. Les plus intenses donnent des raies beaucoup plus faciles à voir que les rayons γ. Dans chaque famille de radioéléments naturels, les spectres des différents éléments en équilibre radioactif ont des intensités variées, l'un d'eux étant généralement prépondérant. Par exemple dans la famille du Ra, celui de Ra$B \rightarrow$ Ra$C (Z = 83)$ est le plus intense, celui de Ra$C \rightarrow$ Ra$C' (Z = 84)$ venant au second rang. Dans les autres familles le ThB et l'Ac X dominent respectivement. Parmi les spectres L celui du RaD qui a fait l'objet de plusieurs travaux a une intensité estimée à 27 photons par 100 désintégrations [10].

2° *Les fréquences* émises sont les mêmes que celles des spectres de rayons X des éléments correspondants. Cette identité a été vérifiée avec une précision convenable dans les travaux mentionnés ci-dessus et, pour quelques raies, avec une très haute précision par Du Mond [11] et ses collaborateurs disposant d'un spectrographe à grande dispersion.

3° *Les intensités relatives* des raies sont comparables à celles des spectres de rayons X en ce qui concerne les spectres K. Quant aux spectres L, ils ont à ce point de vue un aspect très différent des spectres de rayons X et nous reviendrons spécialement sur ce point important.

Dans bien des cas où la spectrographie par diffraction n'a pas été utilisée, les photons de fluorescence ont été étudiés par absorption sélective ou au moyen de compteurs proportionnels et de scintillateurs. Les renseignements donnés par ces méthodes concernent surtout les intensités absolues et les coïncidences entre ces photons et les émissions nucléaires. Les travaux effectués par ces méthodes sont très nombreux, nous en citerons plus loin quelques-uns.

Les spectres K. — Le niveau K étant unique nous avons vu que les spectres K ont un aspect indépendant du mode d'excitation du niveau. Les seuls renseignements que l'on peut tirer de l'observation des spectres K sont leur intensité et les coïncidences éventuelles entre les photons K et d'autres émissions.

L'excitation du niveau K résulte généralement de la conversion interne de plusieurs γ dont la contribution ne peut être distinguée. Tout au plus voit-on globalement le lien entre le nombre de γ convertis et l'intensité du spectre K. On comprend ainsi la prédominance de certains spectres K dans les familles de radioéléments.

Dans la famille de l'Ac cependant, l'intensité relative considérable du spectre accompagnant la transition $\mathrm{Ac}X \rightarrow \mathrm{An}(Z = 86)$ vient confirmer la découverte récente par Rosenblum et Valadares d'un intervalle de structure fine de 154 keV auquel correspond un γ très converti inobservable directement. Le spectre de structure fine présente plusieurs raies dont une très intense qui semblait correspondre au niveau fondamental, mais Rosenblum et Valadares ont trouvé au-dessous de celle-ci deux raies faibles à des intervalles de 26 et 154 keV. Le rayonnement γ de 154 keV correspond donc à près de 100 pour 100 d'excitations et il est fortement converti. Il donne naissance à un spectre K intense et à des raies d'électrons de conversion dont l'intensité était jusqu'à présent difficile à interpréter [8], [12] (*fig.* 1).

D'autre part, la mesure de l'énergie du spectre K indique la valeur de Z qui lui correspond et permet de localiser la transmutation correspondante. Ceci a eu historiquement un intérêt lorsqu'on hésitait à attribuer aux électrons secondaires l'énergie correspondant à la valeur initiale ou finale de Z. Actuellement c'est surtout dans le cas de captures K que l'identification du spectre est utile [13].

Mais c'est surtout l'étude des électrons de conversion, parmi lesquels on peut distinguer ceux qui proviennent de chaque transition, et les mesures en coïncidence qui permettent d'évaluer les coefficients de conversion, les rapports $\frac{K}{L}$ (et en conséquence la nature et la polarité des γ, les spins des niveaux nucléaires, etc.), les probabilités de capture.

Nous ne nous étendrons pas sur ces problèmes déjà étudiés au cours de ce Colloque [14].

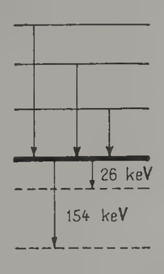


Fig. 1.

L'étude comparée de la conversion interne, des spectres d'électrons de conversion et des spectres de fluorescence fait intervenir les rendements de fluorescence qui ont été l'objet d'une étude particulière de Burhop [15]. Les travaux de radioactivité utilisent, plutôt qu'ils ne permettent de les vérifier, les données acquises à ce sujet par d'autres méthodes plus précises.

Les spectres L. — Il n'y a guère qu'une dizaine d'années que l'intérêt des chercheurs s'est porté sur les spectres L qui malgré leur complexité peuvent fournir d'abondants renseignements sur les transitions radioactives. Une étude d'ensemble de ces spectres a été publiée par M. Riou [16] à qui nous emprunterons la plus grande partie des considérations ci-dessous.

Ce qu'on désigne globalement comme spectre L d'un élément est en réalité la superposition de trois spectres correspondant à l'excitation des niveaux L_{I}, L_{II} et L_{III}. Tandis que dans les spectres K l'aspect général est le même quelle que soit la valeur de Z, les spectres L varient profondément d'un élément à l'autre.

La nomenclature des raies les a groupées en trois séries α, β et γ échelonnées dans l'ordre des énergies croissantes, mais en réalité le spectre L_{I} est réparti entre les groupes γ et β, le spectre L_{II} également, le spectre L_{III} entre α et β. En ne tenant compte que des principales raies, on voit qu'une vingtaine de niveaux M, N, O, etc. peuvent être associés aux trois niveaux L. Or, d'un élément à l'autre les différences énergétiques correspondant à l'association des niveaux 2 à 2 varient et peuvent même che-

vaucher. Il en résulte par exemple que les raies β_1 ($M_{IV} \rightarrow L_{II}$) et β_2 ($N_V \rightarrow L_{III}$) ont sensiblement la même énergie pour $Z = 82$. Pour les Z plus petits on a $\lambda_{\beta_1} > \lambda_{\beta_2}$ tandis que la différence est en sens inverse pour $Z > 82$, l'écart des λ croissant dans les deux sens quand on s'éloigne de $Z = 82$.

Des difficultés d'un autre ordre viennent du fait que l'on connaît très mal actuellement les intensités relatives des raies dans les spectres L de rayons X, certaines données actuelles des tables sont, de toute évidence, erronées [17]. C'est en vue de lever ces incertitudes que C. Victor travaille actuellement au Laboratoire Curie à mesurer les intensités relatives dans les spectres de rayons X des éléments lourds.

Mais en supposant connues ces intensités dans un spectre de rayons X, comment va se présenter le spectre de fluorescence d'un radioélément pour la même valeur de Z ? Il semble qu'on peut admettre que pour chacune des fractions L_I, L_{II}, L_{III} des deux spectres, les intensités relatives seront les mêmes, Mais globalement chacune de ces fractions sera affectée d'un coefficient correspondant aux taux d'ionisation respectifs des trois niveaux L.

Ces probabilités relatives d'ionisation sont différentes pour chaque mode d'excitation : bombardement électronique (tube à rayons X), effet photoélectrique externe, conversion interne. Et dans chacun de ces trois cas elles sont variables respectivement avec l'énergie des électrons incidents, avec la fréquence du rayonnement excitateur, enfin avec la nature (magnétique ou électrique), la multipolarité et l'énergie d'un γ converti.

Pour des valeurs différentes de Z, une variable de plus intervient.

Aux variations des probabilités d'ionisation se superposent celles des rendements de fluorescence correspondant à chaque niveau mais on peut penser qu'ils ne dépendent pas du mode d'excitation. On observe en outre des bandes satellites dues à l'effet Coster-Kronig [18].

Si la probabilité d'excitation de L_I résultant d'une conversion interne est beaucoup plus grande que dans un spectre normal de rayons X, il est possible que les passages Coster-Kronig deviennent très importants. On peut alors s'attendre à voir les bandes satellites devenir très intenses par rapport aux raies de diagramme. Les calculs et les expériences de Kinsey, Salgueiro et Valadares, Frilley, Gokhale et Valadares [19] ont mis ce fait en évidence dans le spectre de fluorescence accompagnant la transmutation $\mathrm{Ra}D \rightarrow \mathrm{Ra}E$ ($Z = 83$) comparé au spectre de rayons X du Bi.

Sans reprendre en détail les données relatives à ces différents facteurs qui sont exposées dans le Mémoire déjà cité de Riou, nous en rappellerons seulement l'essentiel en suivant le même plan que lui.

Probabilités d'ionisation des niveaux L_I, L_{II}, L_{III}. — *a. Par bombardement électronique (tube à rayons X).* — Les données, tant expérimentales que théoriques, sont assez incertaines. Pourvu que l'énergie des électrons incidents soit assez élevée (au moins deux fois celle de L_I) les probabilités d'ionisation seraient dans le rapport inverse des énergies de liaison.

On aurait donc pour les corps lourds des probabilités du même ordre, soit, compte tenu du nombre d'électrons de chaque couche :

$$u_I : u_{II} : u_{III} \simeq 25 : 25 : 50.$$

b. Par effet photoélectrique externe. — On a généralement $u_I < u_{II} < u_{III}$, les rapports restant compris entre 1 et 2.

c. Par conversion interne. — Les probabilités d'ionisation dépendent de l'énergie de la transition γ, de la nature électrique ou magnétique du rayonnement, de sa multipolarité, de Z. Ces questions ayant déjà été exposées ici, nous ne faisons que résumer les notions essentielles utilisées dans le cas particulier qui nous occupe [20].

Des calculs théoriques de Gellman, Griffith et Stanley [21], donnent des valeurs dont les ordres de grandeur sont confirmés par l'expérience.

Par exemple pour la conversion d'un rayonnement $M\,1$, l'énergie ayant peu d'influence on obtient

$$u_I : u_{II} : u_{III} = \begin{cases} 92 : 7,8 : 0,2 \text{ théor.}, \\ 90 : 8 : 2 \text{ exp.} \end{cases}$$

La valeur trop élevée observée pour u_{III} pourrait résulter de mélanges $M\,1$, $E\,2$.

Pour un rayonnement $E\,1$ les trois valeurs de u seraient du même ordre quand l'énergie du γ est environ 50 kV. u_I croît et u_{II}, u_{III} décroissent en restant voisins lorsque l'énergie augmente.

Pour un rayonnement $E\,2$, aux faibles énergies u_I est très petit, u_{II} et u_{III} sont voisins de 50 pour 100. Quand l'énergie augmente u_{II} croît lentement vers 60 pour 100, u_{III} et u_I tendant à peu près symétriquement vers 20 pour 100.

Comme dans le cas de la conversion interne dans le niveau K, l'étude des électrons de conversion permet d'isoler chaque transition γ et d'en déterminer l'énergie, la nature et la multipolarité, ainsi que J. Teillac l'a exposé. Mais lorsque la conversion a lieu dans les niveaux L, l'analyse du spectre de fluorescence peut conduire directement à ces résultats dans certains cas particuliers.

Pour qu'une telle interprétation soit possible il faut que l'excitation du spectre de fluorescence résulte de la conversion d'un γ unique (ou que les autres soient beaucoup moins intenses) d'énergie comprise entre W_K et W_L. Lorsque K et L sont excités simultanément il y a en effet une fraction

du spectre L qui résulte de l'émission des raies $K\alpha$.

On doit alors faire intervenir de nouveaux facteurs : les rendements de fluorescence des trois niveaux, le coefficient de transition $L_I \rightarrow L_{III}$ et le rendement de fluorescence en L_{III} de l'atome doublement ionisé. Le Mémoire de Riou montre qu'il est commode d'utiliser dans les calculs les largeurs de niveaux au lieu des probabilités d'émission.

Le spectre L du RaD a été étudié en détail [19]. Il résulte de la conversion d'un γ de 47 keV (M 1). Il a été enregistré photographiquement par diffraction cristalline et l'on a pu fonder sur une appréciation assez convenable des intensités des raies, des calculs tenant compte de tous les facteurs que nous avons énumérés pour arriver à une comparaison avec le spectre de rayons X obtenu dans un tube à anticathode de Bi. Malheureusement les intensités relatives dans ce spectre de rayons X sont encore, nous l'avons dit, mal connues. Toutefois cet essai d'interprétation a conduit, dans l'ensemble, à des résultats qui rendent assez bien compte des différences d'aspect des deux spectres. On observe en particulier une bande satellite $L\alpha'_1$ dont l'intensité est du même ordre que $L\alpha_1$.

Par la même méthode le spectre L émis lors de la désintégration $^{242}_{96}Cm \rightarrow ^{238}_{94}Pu$ a été obtenu par Barton, Robinson et Perlman [22]. On n'y observe pas de transitions vers L_I. Le γ de 50 keV converti doit être un E 2.

D'autres modes d'analyse des spectres L ont été mis en œuvre. Par exemple l'absorption sélective utilisée, en particulier, par Mme Joliot-Curie et par Riou pour étudier le rayonnement de l'ionium [23]. L'emploi de compteurs proportionnels permet également de tracer un spectre avec un faible pouvoir séparateur. Cette méthode ne permet de distinguer que les trois groupes $L\alpha$, $L\beta$, $L\gamma$ et de mesurer leurs intensités relatives. Pour utiliser ces résultats il est nécessaire de partir d'une hypothèse sur la nature et la polarité du rayonnement γ converti. On en déduit les intensités relatives des principales raies de fluorescence correspondant aux niveaux L_I, L_{II}, L_{III} et on les associe suivant les groupes α, β et γ auxquels elles appartiennent. On peut ainsi calculer quelles doivent être, en fonction de l'hypothèse choisie, les intensités relatives de ces trois groupes et les comparer aux résultats expérimentaux. Malheureusement, quoique les probabilités d'ionisation des trois niveaux L soient très différentes selon les cas envisagés, la reconstitution des trois groupes α, β et γ amène souvent à obtenir des résultats du même ordre à partir d'hypothèses différentes. La méthode est cependant utilisable lorsqu'on peut avoir par des considérations d'un autre ordre le moyen d'éliminer *a priori* certaines options.

Nous citerons par exemple les travaux de Beling, Newton et Rose sur ^{241}Am dont le rayonnement γ de 59,7 keV doit être un E 1, ceux de Scharff, Goldhaber et Mac Known sur ^{231}Pa et ^{234}U, ceux de West, Dawson et Mandelberg sur ^{239}Pu et ^{233}U [24].

L'étude des spectres de fluorescence peut donc apporter une contribution intéressante à la connaissance du mécanisme de certaines transitions nucléaires. En outre, elle permet d'accéder à la mesure des rendements de fluorescence mais avec une précision encore insuffisante. Un progrès pourra être acquis lorsque les travaux en cours auront amélioré notre connaissance des intensités relatives dans les spectres de rayons X. Quant à la spectrographie par diffraction des spectres de fluorescence, elle exige des sources de quelques dizaines de millicuries, mais on pourra l'utiliser efficacement chaque fois que des quantités suffisantes de radioéléments seront disponibles.

Intervention de M. Radvanyi. — A-t-il déjà été possible de faire un essai d'interprétation théorique du désaccord que vous avez pu observer pour les intensités relatives de certaines raies X de la série L ?

Réponse de M. Frilley. — Travaux théoriques de Burhop mais la base expérimentale est tellement incertaine qu'aucune tentative de rapprochement ne peut être faite actuellement.

Intervention de M. Riou. — Dans le cas de la conversion interne de rayonnements γE 2 de faible énergie des noyaux lourds la probabilité d'ionisation du sous-niveau L_I est très faible ($u_{L_I} : u_{L_{II}} : u_{L_{III}} = 3 : 55 : 42$ pour les rayonnements γ de 68 keV émis par Io et 84 keV émis par RTh).

L'étude des spectres L correspondants permettrait donc une comparaison assez précise avec les résultats théoriques pour les sous-niveaux L_{II} et L_{III} : par exemple le rapport d'intensité des raies X, L_{II} et L_{III} serait en première approximation

$$\frac{L_{II}}{L_{III}} = \frac{u_I W_{II}}{u_{III} W_{III}}$$

et le rendement de fluorescence global

$$W_L = u_{II} W_{L_{II}} + u_{III} W_{L_{III}},$$

d'où l'on pourrait déduire $W_{L_{II}}$ et $W_{L_{III}}$

BIBLIOGRAPHIE.

[1] Rutherford et Andrade. — *Phil. Mag.*, 1914, **27**, 854 et **28**, 263.
[2] Rutherford et Wooster. — *Proc. Camb. Phil. Soc.*, 1925, **22**, 834.
[3] Thibaud. — *Ann. de Physique*, 1926, **5**, 73.
[4] Frilley. — *Ann. de Physique*, 1929, **11**, 483.
[5] Valadares. — *Ann. de Physique*, 1934, **2**, 197.
[6] Valadares. — *Rend. Accad. Ital.*, 1940, **2**, 351.
[7] Mlle Meitner. — *Z. Physik*, 1928, **52**, 637 et 645.
[8] Frilley. — *J. Physique Rad.*, 1940, **1**, 34.
[9] Mlle Cauchois et Hulubei. — *C. R. Acad. Sc.*, 1934, **199**, 857 et 1939, **209**, 39.
[10] Tsien san Tsiang. — *C. R. Acad. Sc.*, 1944, **218**, 503.
[11] Muller, Hoyt, Klein et du Mond. — *Phys. Rev.*, 1952, **88**, 775.
[12] Rosenblum et Valadares. — Communication privée.
[13] Abelson. — *Phys. Rev.*, 1939, **56**, 753.
Edwards, Pool et Blake. — *Phys. Rev.*, 1945, **67**, 150.
Radvanyi. — *Thèse*, Paris, 1954.
[14] Teillac. — Communication au Colloque.
[15] Burhop. — The Auger effect, Cambridge, 1952 et Communication au Colloque.
[16] Riou. — *J. Physique Rad.*, 1952, **13**, 593.
[17] Siegbahn. — Spektroskopie der Roentgenstrahlen, Berlin, 1931.
Compton et Allison. — X-rays in theory and experiments, New-York, 1934.
[18] Coster et Kronig. — *Physica*, 1935, **2**, 13.
[19] Kinsey. — *Can. J. Research*, 1948, A, **206**, 404.
Salgueiro et Valadares. — *Port Phys.*, 1949, **3**, 21.
Frilley, Gokhale et Valadares. — *C. R. Acad. Sc.*, 1951, **232**, 50 et 157.
[20] Rose. — Communication au Colloque.
[21] Gellman, Griffith et Stanley. — *Phys. Rev.*, 1952, **85**, 944.
[22] Barton, Robinson et Perlman. — *Phys. Rev.*, 1951, **81**, 208.
[23] Mme Joliot-Curie. — *C. R. Acad. Sc.*, 1948, **227**, 1125.
Riou. — *C. R. Acad. Sc.*, 1949, **228**, 678.
[24] Scharff, Goldhaber et Mc Known. — *Phys. Rev.*, 1951, **82**, 123.
West, Dawson et Mandelberg. — *Phil. Mag.*, 1952, **43**, 875.
Beling, Newton et Rose. — *Phys. Rev.*, 1952, **86**, 797.

UNE ÉTUDE DES ÉLECTRONS AUGER DU NIVEAU L ÉMIS DANS LA DÉSINTÉGRATION DE ^{199}Au

Par S. K. HAYNES et W. T. ACHOR.

Summary. — The L Auger yield of ^{199}Au has been studied in a β-ray spectrometer. The ratio of L Auger electrons to L vacancies was 0.629 ± 0.035. Insufficient resolution and uncertain $L_I \rightarrow L_{III}$ Coster-Kronig yield prevented determination of precise L subshell Auger-yields. Approximate values of 0.577 ± 0.09 and 0.658 ± 0.01 were obtained for the L_{II} and L_{III} shushells respectively.

Note. — This work was partially supported by a contract with the United States Atomic Energy Commission.

Dans les études des noyaux qui désintègrent par l'absorption d'un électron du cortège électronique, il est très important de connaître le rapport entre le nombre des trous dans les couches K, L_I, L_{II}, L_{III}, etc. produit dans la désintégration et les intensités des autres rayonnements émis. Pour déterminer le nombre des trous vides il faut mesurer ou les rayons X ou les électrons Auger et aussi il faut connaître le facteur de fluorescence des rayons X.

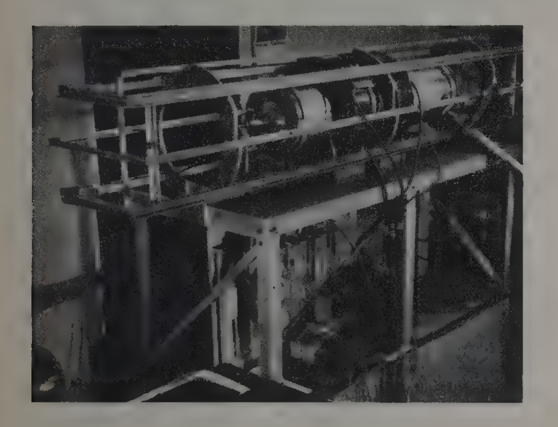


Fig. 1. — Spectromètre à lentille magnétique de l'Université Vanderbilt.

Beaucoup d'études ont été faites sur le rapport entre les rayons X et les électrons Auger de la couche K mais il n'y a que très peu d'études sur les couches L_I, L_{II} et L_{III} [1]. Ayant réussi de compter, l'efficacité du compteur étant connue, les électrons Auger de 7 keV qui suivent la désintégration de ^{65}Zn [10], nous avons voulu déterminer le rendement Auger des couches L_I, L_{II} et L_{III} par une étude des rayonnements de ^{199}Au de 5 keV jusqu'à 500 keV dans le spectromètre à lentille magnétique de l'Université de Vanderbilt (*fig.* 1). Comme nous avons voulu comparer avec précision l'intensité des électrons de 5 à 500 keV, nous n'avons pas pu jusqu'à présent obtenir une résolution assez grande pour séparer les composants L_I, L_{II} et L_{III} des électrons de conversion interne. Cependant le rapport entre ces composants a déjà été mesuré par Mihelich [7], [8] et bientôt pourra être obtenu des calculs de Rose et al. [11]. Mihelich [9] a aussi mesuré les intensités relatives des électrons Auger de la couche K de ^{199}Au.

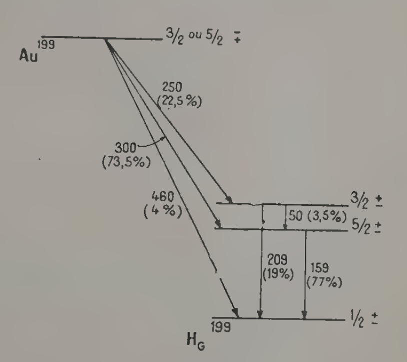


Fig. 2. — Décroissance de ^{199}Au.

La figure 2 montre le schéma de désintégration de ^{199}Au selon Sherk et Hill [12] qui est en assez bon accord avec d'autres chercheurs [3], [13]. Il y a trois groupes de rayons β (460, 302 et 251 keV) et trois rayons γ (209, 159 et 50 keV) dont les électrons de conversion donnent les couches vides K, L_I, L_{II}, L_{III}, etc.

La figure 3 montre un graphique Fermi de notre spectre de ^{199}Au aussi bien que pour chaque groupe β. La courbe expérimentale est en accord avec la somme des trois groupes jusqu'à environ 20 keV.

Cela indique que la source qui était faite de ^{199}Au presque pur par évaporation dans le vide comportait très peu de matière. Nous évaluons l'épaisseur à moins de 1 $\mu g/cm^2$. L'intensité des groupes de rayons β (251 : 302 : 460 : : 0,243 : 0,693 : 0,064) est d'ailleurs en bon accord avec les intensités trouvés auparavant.

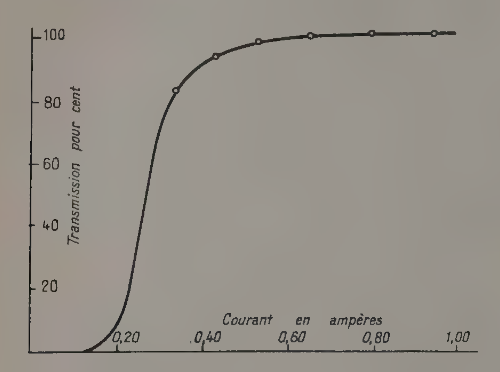


Fig. 3. — Diagramme de Fermi.

La figure 4 montre les électrons de conversion après la soustraction des spectres continus. Les superficies des sommets en prenant en considération les intensités relatives des composants de Mihelich donnent les nombres des trous dans les couches K,

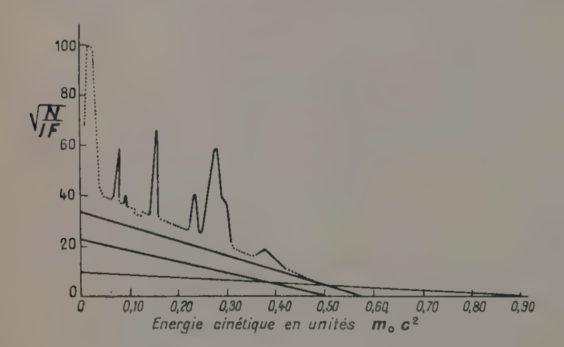


Fig. 4. — Raies de conversion.

L_I, L_{II}, L_{III}, etc. produits directement par les électrons de conversion. On peut calculer le nombre des trous dans L_I, L_{II}, L_{III} produit par les trous dans les couches K, en utilisant le facteur de fluorescence des rayons X pour le numéro atomique 80, les intensités relatives des rayons $K\alpha_1$ et $K\alpha_2$ de Voth [14], et les intensités des composants des électrons Auger du niveau K de Mihelich [9] et de Ellis [5] pour le numéro atomique 83. Enfin on a le nombre total de vides V_{L_I}, $V_{L_{II}}$ et $V_{L_{III}}$ des couches L_I, L_{II} et L_{III} sauf ceux produits par le processus Coster-Krönig [2]. Pour ce dernier processus il s'agit surtout des transitions entre L_I 14,85 keV et L_{III}, 12,2 keV.

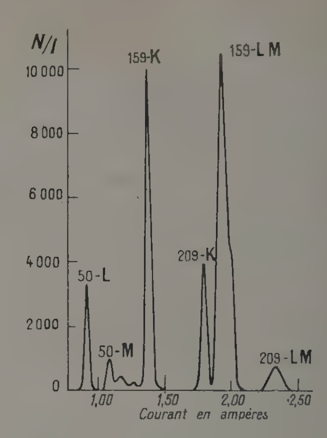


Fig. 5. — Courbe de transmission. Fenêtre de 7 U. G.

La figure 5 montre l'efficacité du compteur. La figure 6 montre le spectre des électrons Auger de la couche L corrigé du facteur d'efficacité. Les quatre sommets représentent de droite à gauche

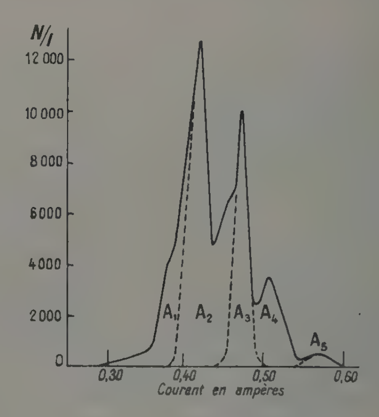


Fig. 6. — Raies Auger.

les électrons $L_{I,II} \to A$, B, où A et B représentent les couches au-dessus de M, $L_{I,II} \to M$, A, et $L_{III} \to A$, B, $L_{I,II} \to M_{IV,V}$, $M_{IV,V}$, et $L_{III} \to M$, A, et $L_{III} \to M_{IV,V}$, $M_{IV,V}$, avec $L_{I,II} \to M_{I,II,III}$, M. La superficie A_1 à gauche représente les transitions $L_{III} \to M_{I,II,III}$, M. Malheureusement la résolution n'est pas assez grande pour séparer les 45 lignes, mais si l'on dit que les intensités relatives des composants qui ont leurs origines dans les couches L_I et L_{II} sont les mêmes que celles qui ont leurs origines dans la couche L_{III}, on peut diviser la superficie en parties appartenant aux couches $L_{I,II}$ et L_{III}.

Le nombre des trous L_I est assez petit. Ces couches

sont remplis par trois processus [1] : émission des rayons X; émission d'électrons Auger d'une énergie 7,7 à 14,85 keV [3]; émission d'électrons Coster-Krönig d'une énergie très basse. Kinsey [5] donne pour la probabilité relative de ces trois processus, 0,09 pour les rayons X, 0,25 pour les électrons Auger et 0,66 pour les électrons Coster-Krönig. Si l'on accepte ces valeurs on peut obtenir l'intensité des électrons Auger de la couche L_{II} par l'expression $I_{L_{II}} = I_{L_I L_{II}} - I_{L_I}$. L'efficacité d'émission des électrons Auger de la couche L_{II} est $\frac{I_{L_{II}}}{V_{L_{II}}}$. Pour obtenir l'efficacité Auger pour la couche L_{III} il faut ajouter les couches vides produites par le processus Coster-Krönig de la couche L_I. Enfin on obtient pour l'efficacité Auger de la couche L_{II}, 0,577 ± 0,086 et pour la couche L_{III}, 0,658 ± 0,099. Ou si l'on veut les rendements de fluorescence, ils sont pour L_{II}, 0,423 ± 0,086 et pour L_{III}, 0,342 ± 0,1. Par comparaison Kinsey [5] a obtenu 0,41 et 0,26 et Küstner et Arends ont obtenu 0,268 et 0,295.

Les valeurs données ne sont pas définitives mais le rapport entre la superficie complète des électrons Auger de la couche L et le nombre total des places vides dans les couches L vides, 0,629 ± 0,035 est assez précis. Il faudrait faire une étude des électrons Auger de la couche L seule avec une résolution très élevée et il faut continuer ces études sur d'autres substances radioactives comme RaD et ^{198}Au pour pouvoir évaluer l'importance du processus Coster-Krönig.

BIBLIOGRAPHIE.

[1] Burhop E. H. S. — The Auger Effect and Other Radiation less Transitions, Cambridge University Press, Cambridge, 1952, p. 55.

[2] Coster D. et Krönig L. — *Physica*, 1935, **2**, 13.

[3] Shalit A. de, Huber O. et Schneider H. — *Helv. Phys. Acta*, 1952, **25**, 279.

[4] Ellis C. D. — *Proc. Roy. Soc.*, 1933, **139**, 336.

[5] Kansey B. B. — *Can. J. Research*, 1948, **264**, 404.

[6] Küstner H. et Arends E. — *Ann. Physik*, 1935, **22**, 443.

[7] Mihelich J. W. — *Phys. Rev.*, 1952, **87**, 646.

[8] Mihelich J. W. — Communication privée.

[9] Mihelich J. W. — *Phys. Rev.*, 1952, **88**, 415.

[10] Perkins J. F. et Haynes S. K. — *Phys. Rev.*, 1953, **92**, 687.

[11] Rose M. E. (à paraître).

[12] Sherk P. M. et Hill R. D. — *Phys. Rev.*, 1951, **83**, 1097.

[13] Siegbahn K. — *Arkiv Fysik*, 1952, **4**, 223.

[14] Voth G. — *Ann. Physik*, 1942, **41**, 375.

LES ÉLECTRONS AUGER DE Th*B*

Par MILORAD MLADJENOVIĆ et HILDING SLÄTIS.

Summary. — Recent results on the energy and intensity of the *K* Auger lines of Th*B*. Comparison with theory.

Je voudrais donner brièvement les résultats d'un travail récent fait par le Professeur Slätis et moi-même à l'Institut Nobel [1].

1. Facteur d'écran pour les électrons *L*. — Si nous avons à faire à une transition $K - L_{\rm I} - L_{\rm II}$, nous comparons l'énergie de la raie, obtenue par la mesure $E_{KL_{\rm I}L_{\rm II}}$, avec la valeur obtenue en retranchant l'énergie de liaison des électrons $L_{\rm I}$ et $L_{\rm II}$ de celle de l'électron K. Si l'effet a lieu dans un atome de numéro atomique Z, nous devons prendre les énergies de liaison E_K^Z et $E_{L_{\rm I}}^Z$ dans l'atome Z, mais l'énergie de l'électron $L_{\rm II}$ est plus grande parce que, au moment de l'expulsion, l'atome est une fois ionisé. On avait pensé que l'énergie $E_{L_{\rm II}}^{Z+1}$ serait plus exacte, mais, en réalité, cette énergie est probablement égale à une valeur intermédiaire entre $E_{L_{\rm II}}^Z$ et $E_{L_{\rm II}}^{Z+1}$, et on pourrait la désigner par $E_{L_{\rm II}}^{Z+\Delta Z}$. On peut alors définir [2] un facteur d'écran ΔZ par

$$\Delta Z = \frac{E_{L_{\rm II}}^{Z+\Delta Z} - E_{L_{\rm II}}^Z}{E_{L_{\rm II}}^{Z+1} - E_{L_{\rm II}}^Z}.$$

Pour déterminer ΔZ, on trouve d'abord la valeur effective de l'énergie de liaison $E_{L_{\rm II}}^{Z+\Delta Z}$ par la relation

$$E_{L_{\rm II}}^{Z+\Delta Z} = E_K^Z - E_{L_{\rm I}}^Z - E_{KL_{\rm I}L_{\rm II}},$$

où $E_{KL_{\rm I}L_{\rm II}}$ est la valeur de l'énergie de l'électron Auger, déterminée expérimentalement. En se servant de cette relation pour toutes les transitions où figure l'électron $L_{\rm II}$, on obtient une valeur moyenne de $E_{L_{\rm II}}^{Z+\Delta Z}$.

Nous avons trouvé les valeurs de $E_{L_{\rm I}}^{Z+\Delta Z}$, $E_{L_{\rm II}}^{Z+\Delta Z}$ et $E_{L_{\rm III}}^{Z+\Delta Z}$ pour les électrons Auger de Th*B*.

Les valeurs de ΔZ, comparées à celles trouvées par Bergstrom et Hill [2], sont données dans le tableau suivant :

TABLEAU I.

Couche.	ΔZ. Slatis-Mladjenović.	ΔZ. Bergstrom-Hill.
$L_{\rm I}$	0,53	0,54
$L_{\rm II}$		
$L_{\rm III}$	0,76	0,76

On voit que les deux mesures sont en bon accord. La connaissance de ΔZ permet le calcul des transitions Auger avec une erreur inférieure à 0,05 pour 100 et, comme les raies Auger sont souvent présentes, on peut dans certains cas s'en servir pour l'étalonnage de l'énergie.

2. Intensités des électrons Auger. — La figure 1 montre le spectre Auger obtenu dans un spectromètre à aimant permanent avec une détection photographique (*fig.* 1). Les valeurs des intensités sont données dans le tableau II. Nous avons aussi donné les valeurs trouvées par Mihelich, Bergstrom, Hill et Ellis. On voit que les valeurs expérimentales

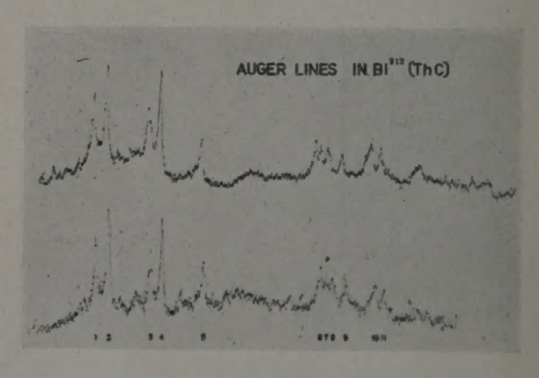


Fig. 1.

Tableau II.

Intensités relatives, expérimentales et théoriques, des raies Auger.

Transition. Z........	Mihelich. 79.	Bergström et Hill. 80.	Ellis. 83.	Mladjenović et Slätis. 83.	Moyennes expéri-mentales. 80.	Théorie non relativiste de Burhop 79.	Théorie relativiste de Massey et Burhop. 79.
$KL_{I}L_{I}$	1	1	1	1	1	1	1
$KL_{II}L_{I}$	1,7	1,2	1,8	1,8	1,6	1,1	5,5
$KL_{I}L_{III}$	1,2	0,7	1,3	1,1	1,1	2,3	5,3
$KL_{II}L_{II}$	~0,3	0,2	< 0,2	< 0,2	0,2	0,96	–
$KL_{II}L_{III}$	1,4	1,4	2,3	1,6	1,7	2,6	–
$KL_{III}L_{III}$	0,8	0,6	1,3	0,8	0,9	3,2	–

sont, avec quelques exceptions, en accord, mais qu'elles sont en désaccord presque total avec les valeurs théoriques.

3. **Rendement de fluorescence.** — Nous avons trouvé la valeur de 0,957 pour le rendement de fluorescence.

BIBLIOGRAPHIE.

[1] Slatis et Mladjenović. — *Arkiv f. Fysik*, 1954, **9**, 4.

[2] Bergstrom et Hill. — *Arkiv f. Fysik*, 1954, **8**, 21.

TABLE DES MATIÈRES

Le Gérant : MAURICE BLONDIN. 148315 IMP. GAUTHIER-VILLARS, 55, quai des Grands-Augustins, Paris. — 1955.